

令和3～5年度環境研究総合推進費

課題番号：5-2103

『大気中マイクロプラスチックの実態解明 と健康影響評価』

【重点課題⑯】

大気・水・土壌等の環境管理・改善のための対策技術の高度化及び
評価・解明に関する研究

【行政要請研究テーマ(行政ニーズ)】

(5-8)大気中に存在するマイクロプラスチックの呼吸器系への曝露
による人健康影響に係る研究

研究代表者：大河内 博(早稲田大学)

サブテーマ1：大河内博(早稲田大学)

サブテーマ2：梶野瑞王(気象研究所)

サブテーマ3：石原康宏(広島大学)



研究開発目的

大気中マイクロプラスチック(AMPs)

(1) 迅速分析法確立と実態解明

空気動力学径分布, 個数濃度, 素材, 添加物・吸着物

(2) 環境動態モデルの構築

領域収支(発生・輸送・沈着), 気道沈着率, 雲形成能

(3) 呼吸器系健康影響の解明

細胞試験, 動物試験

世界に先駆けて, 産官学連携基盤を構築



行政課題への貢献: 国内発生源対策, 地球規模汚染防止,
健康リスク低減

研究目標

全体目標	産学連携で AMPs 分析法を確立し、国内外における大気圏動態を野外観測と数値計算の両面から明らかにし、起源推定を行う。さらに、AMPs の健康影響リスクとして呼吸器系に焦点を当て、炎症惹起作用および気管支喘息に対する影響を毒性学的見地から評価する。 <u>3 年間で国内学会 50 回、国際学会 20 回、査読付き論文 10 報をアウトプットし、ホームページで情報公開する。</u>
------	--

- ・実績：令和 3 年～令和 4 年 8 月
国内学会：26回、国際学会：11回、査読付論文：7報
国民との対話実績：15回、マスコミ報道：23回、受賞実績：2回

サブテーマ 1	大気中マイクロプラスチックの分析法確立と実態解明
実施機関	早稲田大学、徳島大学、東洋大学、大阪公立大学
目標	1 試料あたり 2 日以内の AMPs 迅速前処理法、 μ FTIR による 24 時間以内の全面積 AMPs 自動計測法を確立する。国内 12 箇所（都市：札幌、新宿、名古屋、大阪、広島、徳島、北九州、森林：福島、生田、富士山麓、遠隔：利尻、能登）で大気濃度と大気沈着の観測ネットワークを構築する。富士山頂、太平洋上、北極、南極、東南アジアの AMPs を分析して地球規模汚染の実態を解明する。AMPs 添加物・吸着物の同定を行う。

研究目標

サブテーマ 2 ←	大気中マイクロプラスチックの環境動態モデリング ←
実施機関 ←	気象研究所 ←
目標 ← <ul style="list-style-type: none">AMPsモデル開発サブ1観測との比較タイヤ摩耗片排出インベトリ構築自動車由来粒子の健康影響相対評価氷核能評価	まず発生源が明らかになっている自動車タイヤ摩耗粉塵と繊維状マイクロプラスチックの領域収支を評価する。そして、サブテーマ1の観測成果に基づいて、各種AMPsの素過程モデルをNHM-Chemに実装し、大気濃度観測を用いてそれらの発生インベトリを構築する。NHM-Chemにより各種AMPsの領域収支(発生、輸送、沈着量)を明らかにする。さらにAMPsの形状・材質が大気動態や雲・降水変化に及ぼす影響評価を行い、領域収支のさらなる高精度化を図る。 ←
サブテーマ 3 ←	大気中マイクロプラスチックの呼吸器影響の解明 ←
実施機関 ←	広島大学 ←
目標 ← <ul style="list-style-type: none">道路粉塵/繊維状PET細胞試験・動物試験劣化繊維PETの毒性評価(追加)	モデルプラスチック微粒子と劣化プラスチック微粒子を肺上皮細胞、マクロファージに曝露し、マイクロプラスチックの上皮バリア、免疫に及ぼす影響を明らかにする。モデルプラスチック微粒子と実プラスチック微粒子をマウスに曝露し、呼吸器影響を調べる。呼吸器に炎症が生じ、或いは気道抵抗が上昇した場合、微粒子の用量依存性を調べて無毒性量を決定する。 ←

研究計画

課題	令和3年		令和4年		令和5年	
	前期	後期	前期	後期	前期	後期
サブ1：分析法確立と実態解明	前処理法・定量法確立	分析 (μFTIR)	添加物・吸着物分析	ANPs分析検討		
1.1 標準分析法の確立						
1.2 国内観測網の構築・実態解明	準備・調整	6箇所開始	12箇所開始			
1.3 地球規模汚染の実態解明	準備・調整	観測	分析			
1.4 分級装置開発	打ち合わせ	試作機製作	装置完成・実粒子捕集			
サブ2：環境動態モデル						
2.1 大気輸送の第一推定		モデル改良		再現実験	結果の解析	
2.2 AMPsの寄与推定		モデル改良		再現実験	結果の解析	
2.3 氷晶核・降水相互作用インパクト		モデル改良		再現実験	結果の解析	
2.4 AMPs肺沈着モデル		モデル改良		再現実験	結果の解析	
サブ3：健康影響評価						
3.1 実験用粒子調整	モデル粒子調整					
3.2 細胞試験		モデル粒子		実粒子		
3.3 動物試験		モデル粒子		実粒子		

総合評価・総括

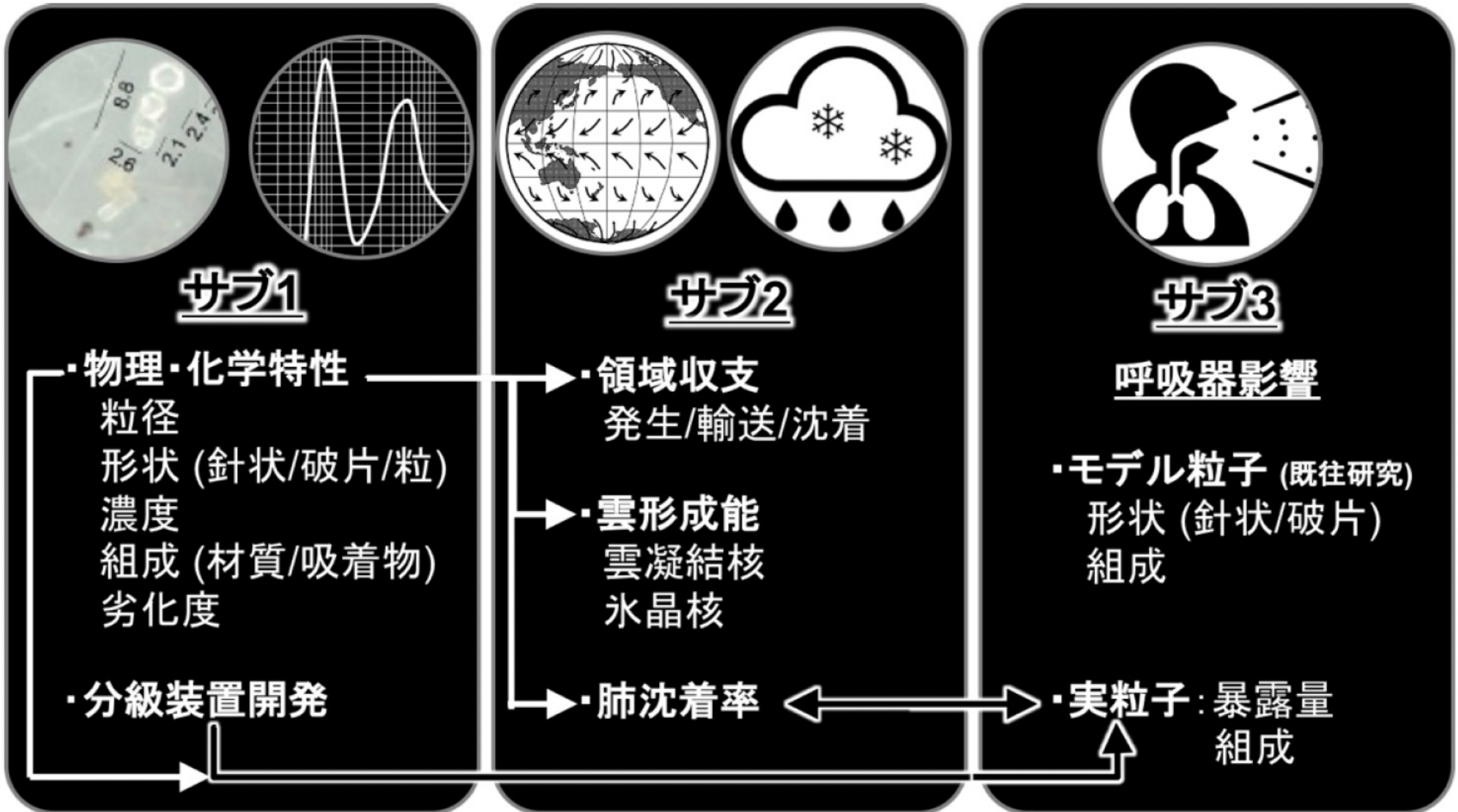
サブテーマ2

- ・ 令和3年度：自動車タイヤ摩耗粉塵，繊維状MPsによる領域収支
- ・ 令和4年度：国内観測に基づいて発生源インベントリ構築，AMPs領域収支の高度化
- ・ 令和5年度：数値モデルによる長距離輸送評価，雲核形成，肺沈着モデル改良

サブテーマ3

- ・ 令和3年度：PS粒子，自動車タイヤ摩耗粉塵，繊維状MPsによる細胞試験
- ・ 令和4年度：マウスを用いたモデルAMPsの喘息改悪評価，無毒性量の算出
- ・ 令和5年度：実大気粒子による細胞試験，動物試験により呼吸器影響評価

サブテーマ間の連携



AMPs : 大気エアロゾル中濃度



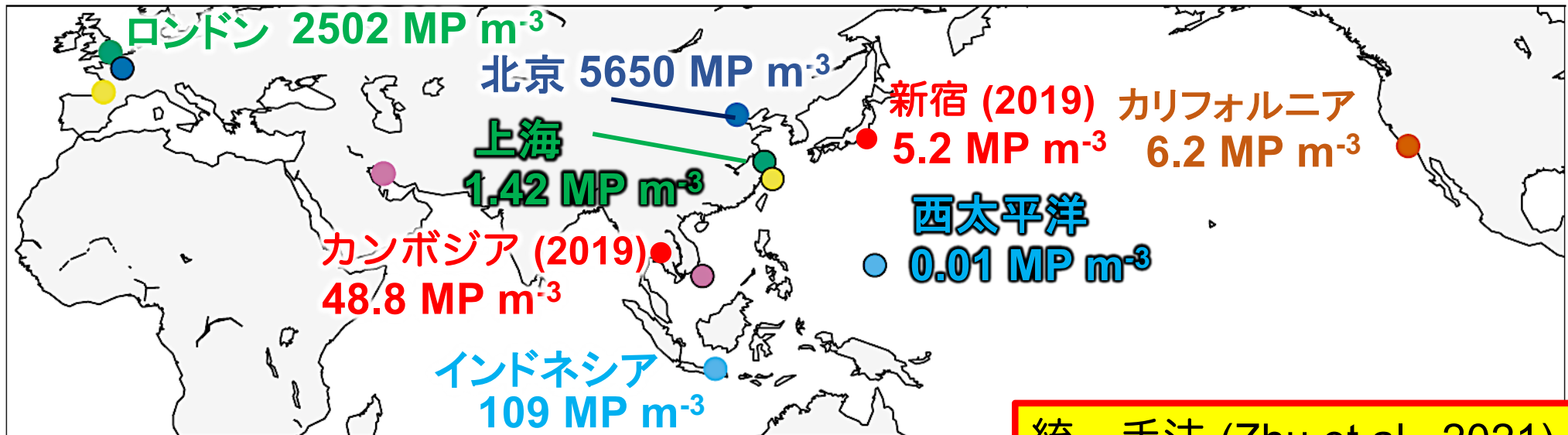
Waseda University

Okochi Lab.



濃度範囲 : 0.01 – 5650 MP m⁻³

Revell et al., *Nature* **598**, 462, 2021



Location	Concentration (MP m ⁻³)	Analytical method
● Beijing, China ¹³	5,650	SEM-EDX
● London, United Kingdom ¹²	2,502	Raman spectral imaging
● Surabaya, Indonesia ²⁰	109	FTIR
● Bushehr Port, Iran (dusty days) ¹	10.3	μRaman
● French Atlantic Coast (offshore wind) ³	9.6	μRaman
● Southern California ⁹	6.2	μRaman and μFTIR
● French Atlantic Coast (onshore wind) ³	2.9	μRaman
● Bushehr Port, Iran (normal days) ¹	2.1	μRaman
● Shanghai, China ¹⁴	1.42	μFTIR
● Paris, France ⁸	0.9	μFTIR
● East China Sea ¹⁵	0.13	μFTIR
● South China Sea and West Pacific Ocean ¹⁷	0.11	μFTIR
● West Pacific Ocean ¹⁵	0.01	μFTIR

統一手法 (Zhu et al., 2021)

中国北部(北京, 天津)

: 358 MP m⁻³

中国南部(南京, 上海, 杭州)

: 230 MP m⁻³

✓ 手法が不統一

✓ 6桁も異なる

✓ 空気動力学径 不明

ヒト肺(生体)からマイクロプラ検出



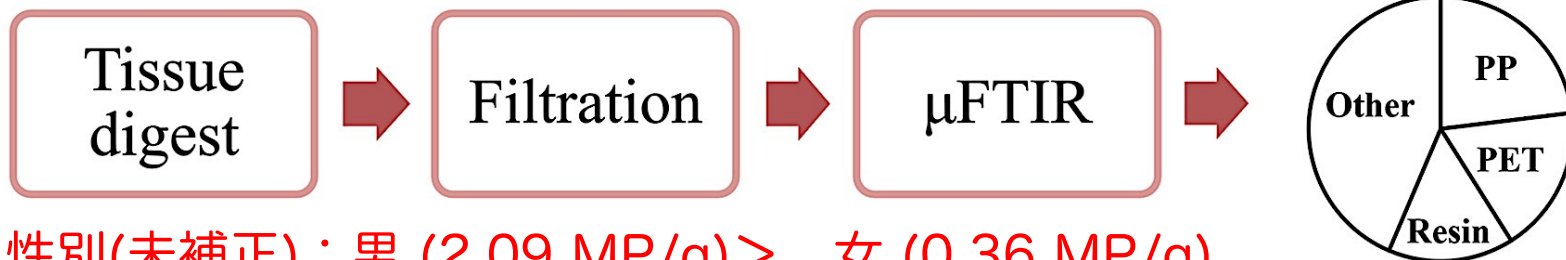
Waseda University



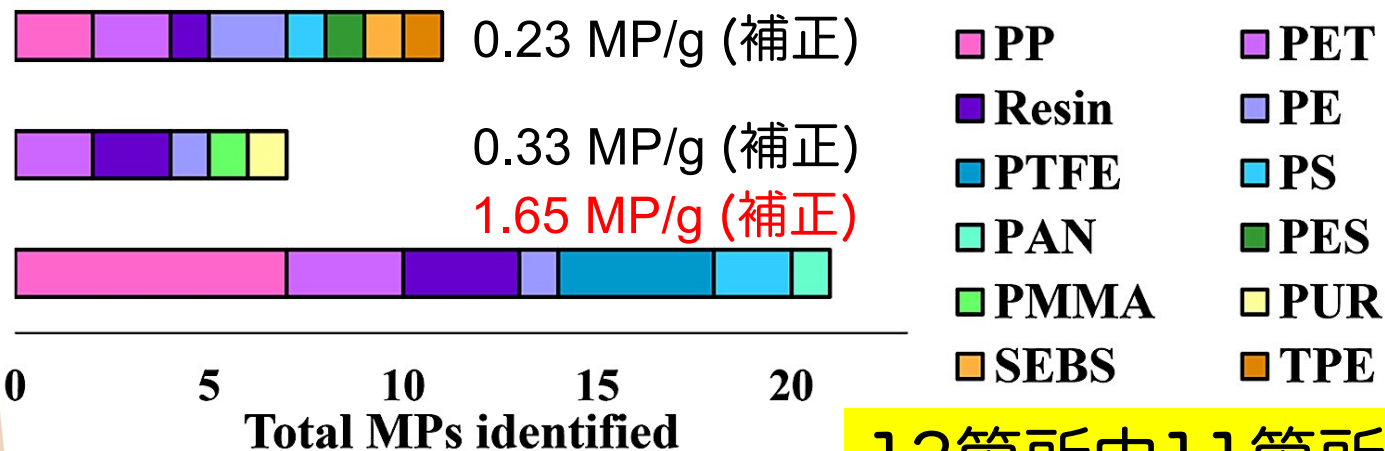
New!!

英国

手術切除した合計11名の肺試料(13箇所)



性別(未補正) : 男 (2.09 MP/g) > 女 (0.36 MP/g)



13箇所中11箇所から検出

- ・ 存在量 : 上部 < 中部 << 下部
- ・ 形状 : 繊維状 (49%), 破片状 (43%)
- ・ 大きさ : 長さ 12 - 2475 μm, 幅 4 - 88 μm (最小 : 長さ 14 μm, 幅 4 μm)
- ・ 材質 : 12種を同定

ポリプロピレン(23%), ポリエチレンテレフタレート(18%)

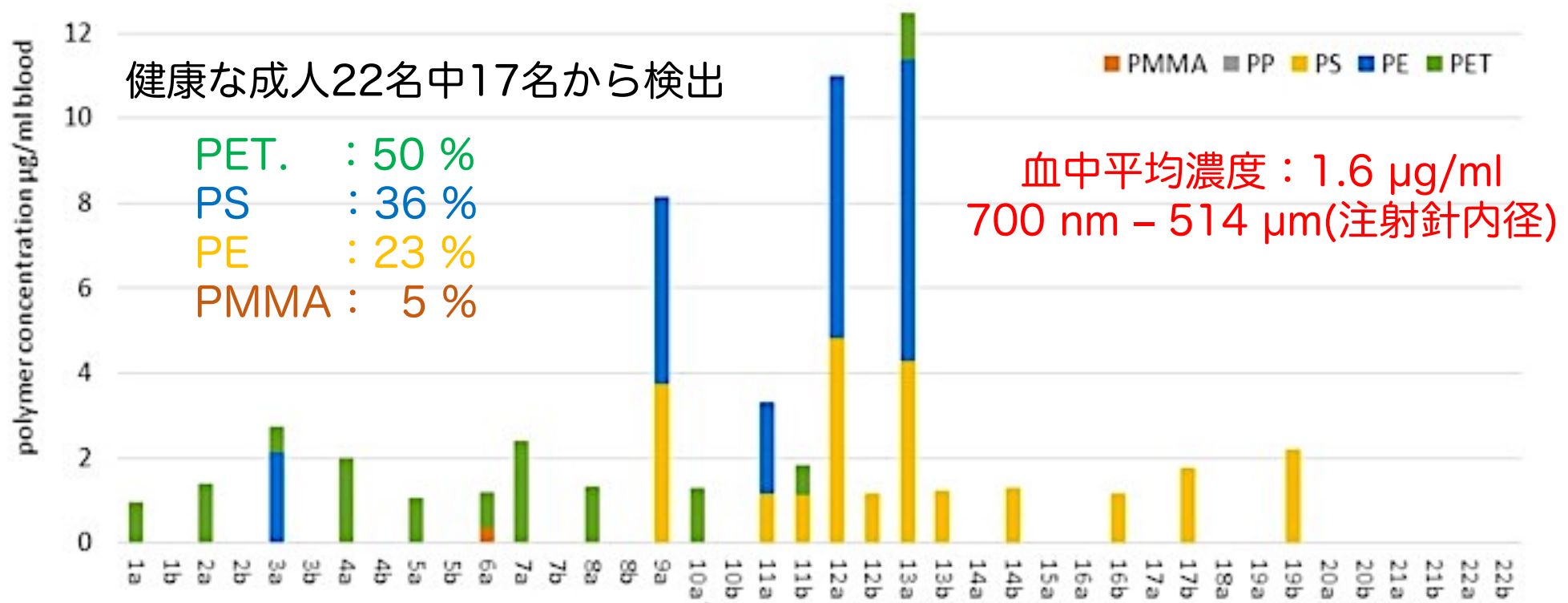
ヒトの血液からマイクロプラ検出



Waseda University

Okochi Lab.

New!!



サブ1：AMPs迅速分析法



Waseda University

Py-GCMS：不要？

Okochi Lab.



サンプリング

- 採取地点
- 採取項目
- 採取期間
- 空気動力学径
- 積算流量

前処理

- 有機物除去
- 密度分離

μFTIR & μRaman

- 質量濃度計測：×
- 添加剤計測：×
- 吸着物：△

キャラクタリゼーション

- ① 材質
- ② 形状：粒状，破片，繊維
- ③ 大きさ（フェレ径）

実態解明

- 個数濃度，質量濃度
- 空気動力学径分布
- 実粒径分布
- 大気沈着量
- 起源解析

気象および大気汚染データ

- 天候
- 気温・湿度
- 降雨量
- 風向・風速
- 後方流跡線
- PM_{2.5}
- O_x
- NO_x
- SO₂
- その他

- スクリーニング時の見落とし
- MPs劣化に伴う誤判別と遅延
- 粒径計測の不確実性

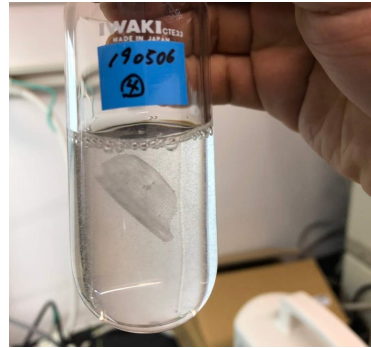
サブ1：前処理&同定法：改良



試料採取

有機物除去

H₂O₂(過酸化水素)で生物の遺骸や有機物を除去
(2日~7日)



密度分離

5.3 M NaI (1.8 g/m³)で、比重差を利用して、鉍物粒子から分離



静置 ×

遠心分離 ○

ろ過 (アルミナフィルター)

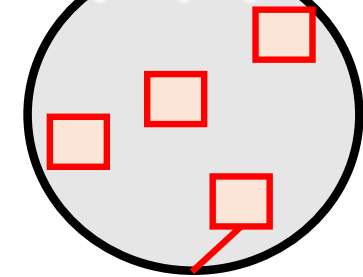
可視画像の撮影・IR測定

μFTIR ATR イメージング



PerkinElmer Japan, Spectrum3 + Spotlight400

Sample spot point



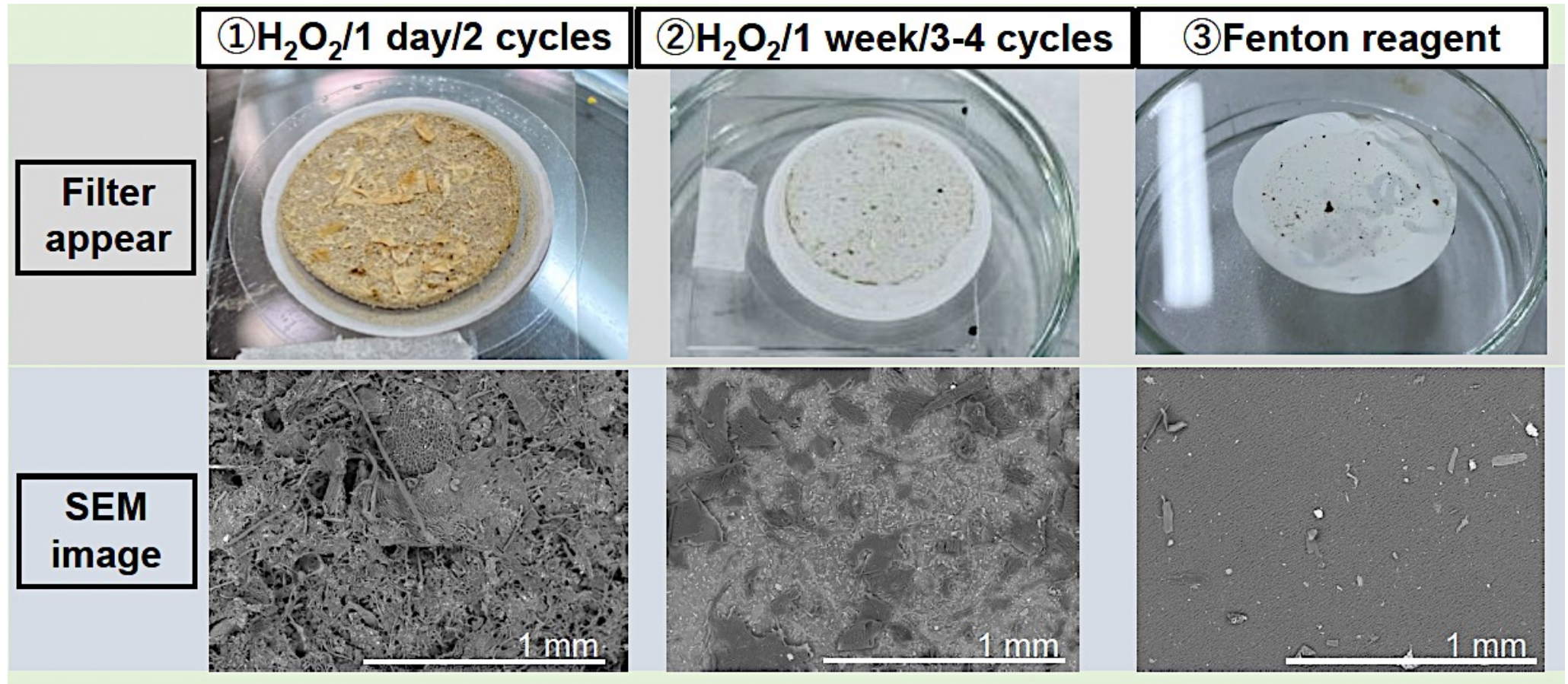
Measurement point (selected at random)

Wavenumber resolution	8 cm ⁻¹
Number of scan	1 time
Speed of scan	2.2 cm/sec
Wavenumber Range	4000 – 680 cm ⁻¹
Pixel size	1.56 μm
Sample size	750 × 750 μm 4 sights
Measurement area	17.9 %

- 視野面積：400 μm/辺 → 750 μm/辺
- ろ過面積縮小：16 mm → 4 mm
- 計測時間短縮：7時間/視野 → 40分/視野

サブ1：フェントン試薬の利用

林内雨：エアロゾル，林外雨に比べて格段に有機物多い
有機物分解の迅速化・効率化 → フェントン試薬の使用



夾雑物

過剰

中程度

少ない

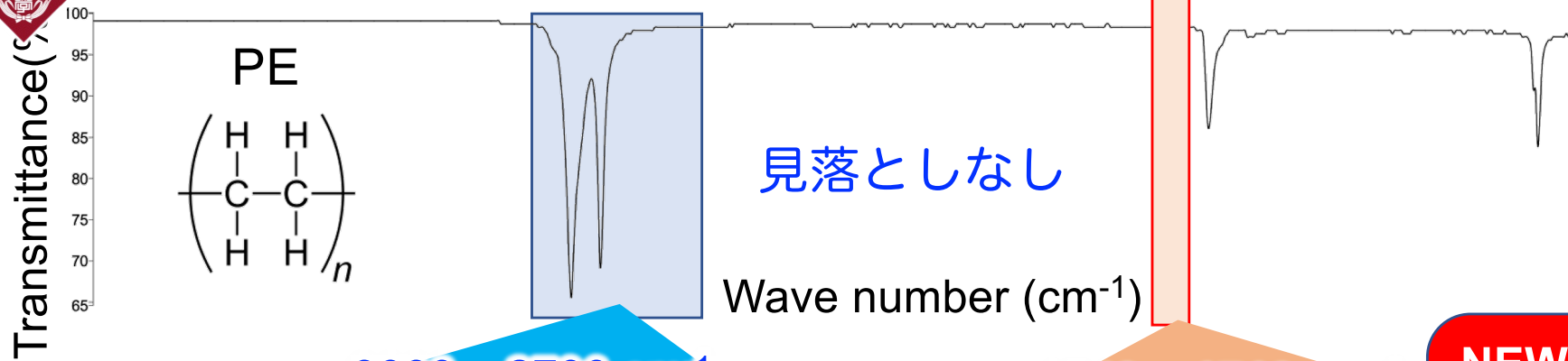
計測不可

計測不可

計測可能

研究協力者：日本女子大・宮崎研

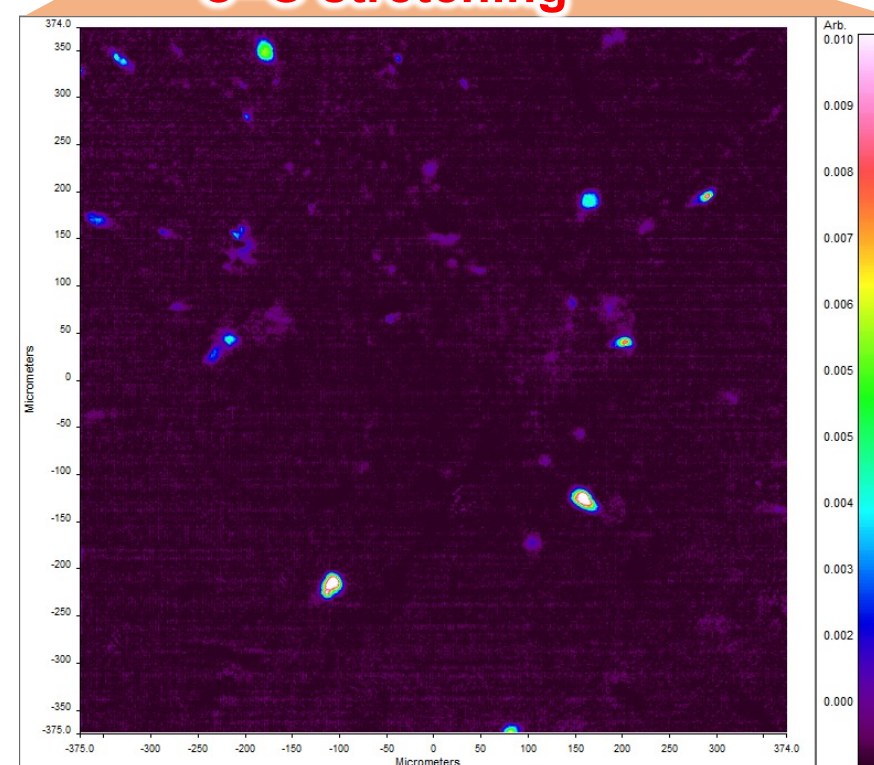
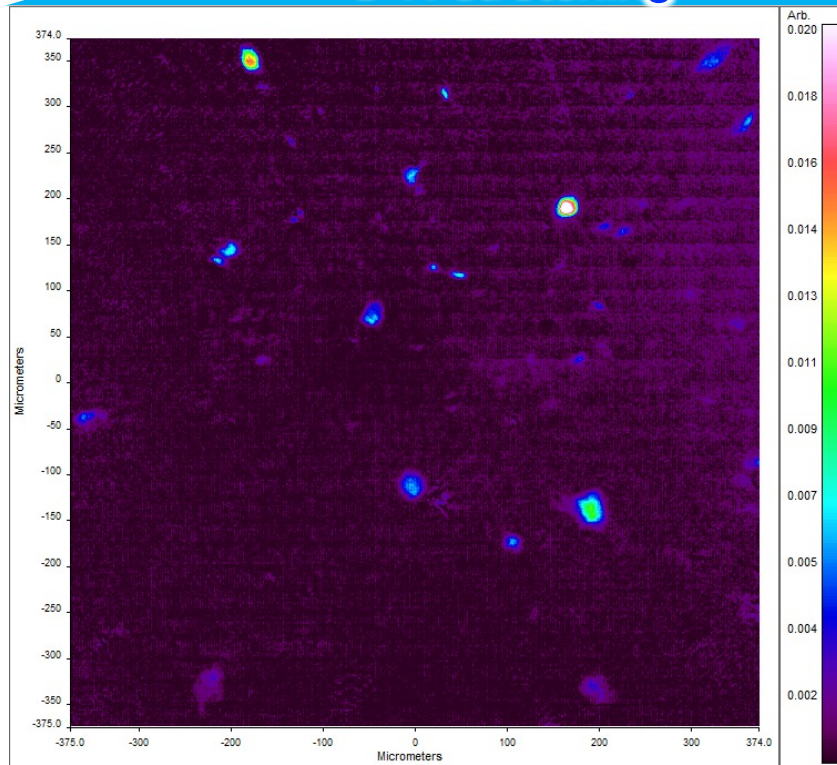
サブ1：μFT-IRスクリーニング手法



3000 – 2700 cm⁻¹
C-H stretching

1740 – 1710 cm⁻¹
C=O stretching

NEW



Ex. Collected in summit, July 26th-August 3rd(2021)

サブ1：μFT-IRスクリーニング手法



μFTIR：同じ試料計測でO-PTIRに比べてPETが少ない

PET

C-H stretching

C=O stretching
(aromatic ester)

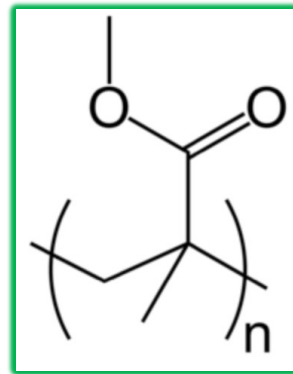
C-O stretching
(aromatic ester)

C-O stretching
(ester)

見落とし
可能性大

PMMA

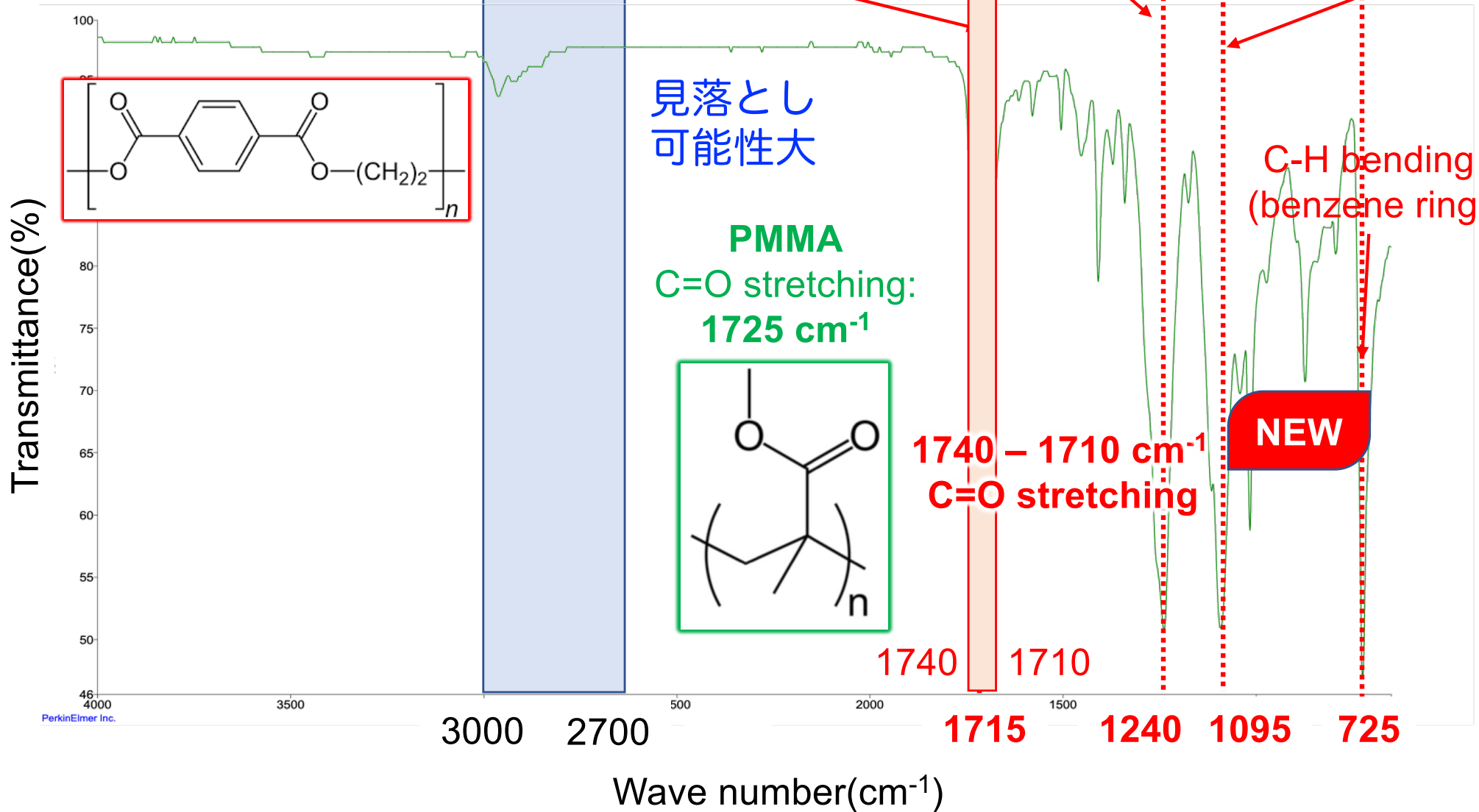
C=O stretching:
1725 cm⁻¹



C-H bending
(benzene ring)

1740 – 1710 cm⁻¹
C=O stretching

NEW



サブ1：PM_{2.5}への適用



n=77 (Total at Summit in 2021)

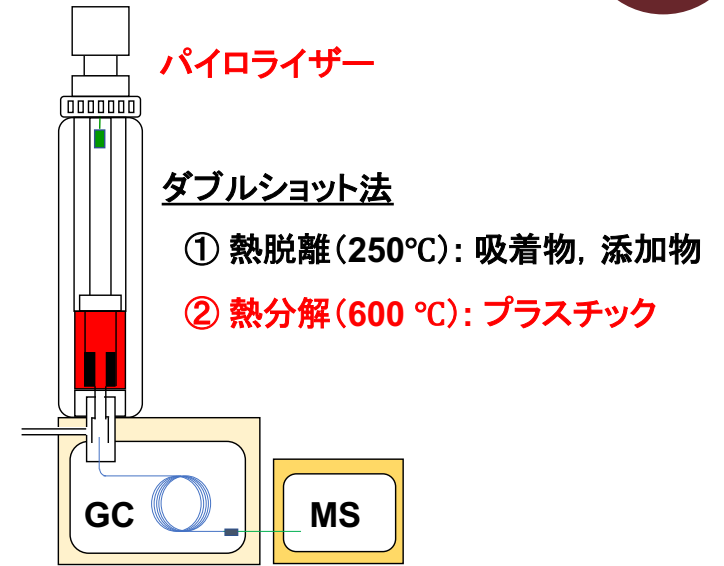
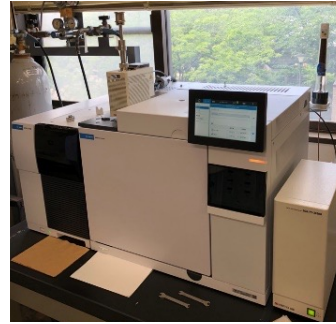
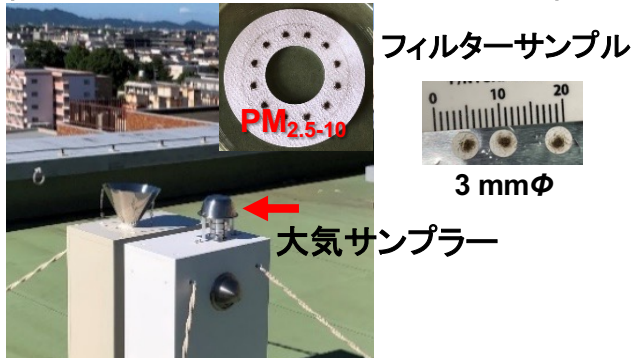
Okochi Lab.

Polymer type	①3000-2700 cm ⁻¹ (Before)	②1740-1710 cm ⁻¹ (New)	①+② (After)
PE	2	0	2
PP	21	0	21
PS	3	0	3
PET	5	34	39
AR	1	0	1
ABS	3	0	3
PC	1	0	1
GP	1	0	1
SI	0	0	0
EPDM	6	0	6
PUR	0	0	0
EP	0	0	0
PDAP	0	0	0

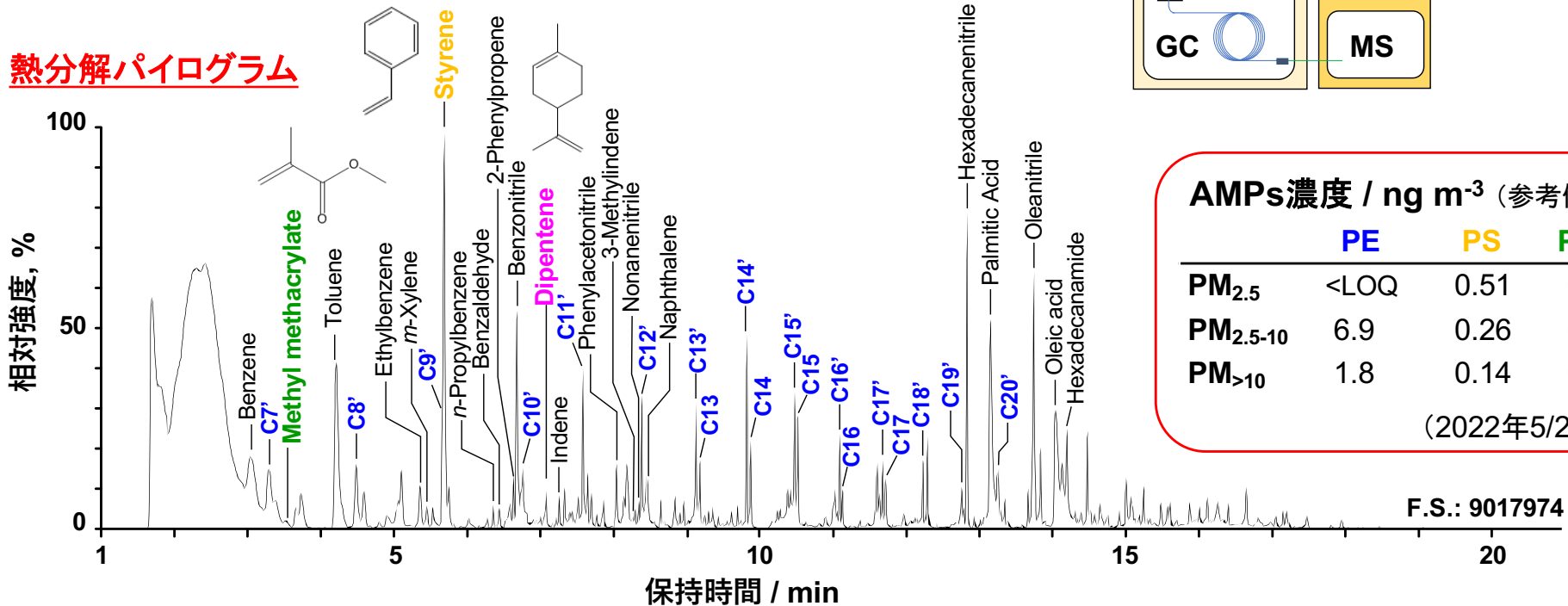
サブ1：迅速化 Py-GCMSの適用



n=77 (Total at Summit in 2021)



熱分解パイログラム



AMPs濃度 / ng m⁻³ (参考値)

	PE	PS	PMMA
PM _{2.5}	<LOQ	0.51	0.38
PM _{2.5-10}	6.9	0.26	0.095
PM _{>10}	1.8	0.14	0.071

(2022年5/26-6/2)

前処理5分, 分析40分 → AMPsの定性, 定量 (質量濃度)

徳島大・竹内先生

サブ1：国内観測網の構築



共通の採取法・前処理法・分析法

札幌（北海道）



フォールアウト

福島（福島）



フォールアウト

・国内12地点で採取
(計画前倒し)

都市：6地点

郊外：4地点

遠隔：2地点



徳島（徳島）



フォールアウト

エアロゾル

東広島
(広島)

堺（大阪）

松代（新潟）

珠洲（石川）

福島（福島）

浪江（福島）

新宿（東京）

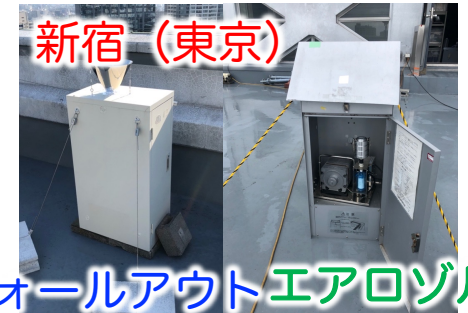
生田（神奈川）

富士山頂

富士山南東麓（静岡）

徳島（徳島）

新宿（東京）



フォールアウト エアロゾル

堺（大阪）



フォールアウト エアロゾル

名古屋：池盛氏，九州・沖縄も

AMPs : 採取方法



粒径別エアロゾル

MCI (Multi nozzles Cascade Impact) サンプラー



10 μm < (PM_{10} <)
2.5 - 10 μm ($\text{PM}_{2.5-10}$)
< 2.5 μm ($\text{PM}_{2.5}$)



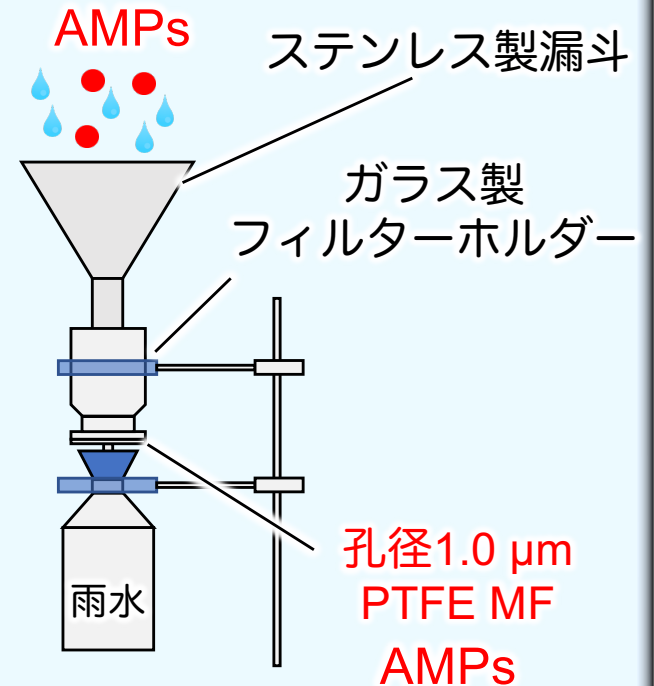
LVポンプ
(20 L/min)



1・2段目 3段目
PTFEバインダー
ガラス繊維フィルター

フールアウト

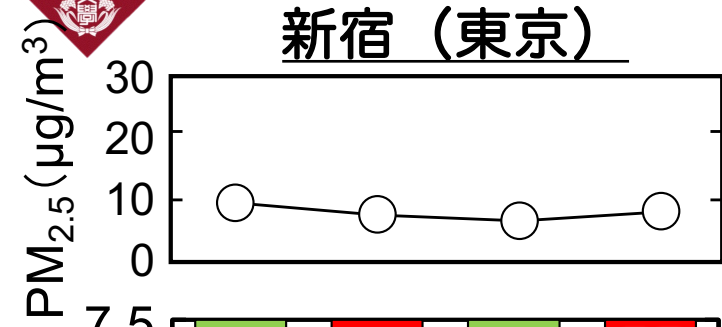
ろ過式雨水採取装置



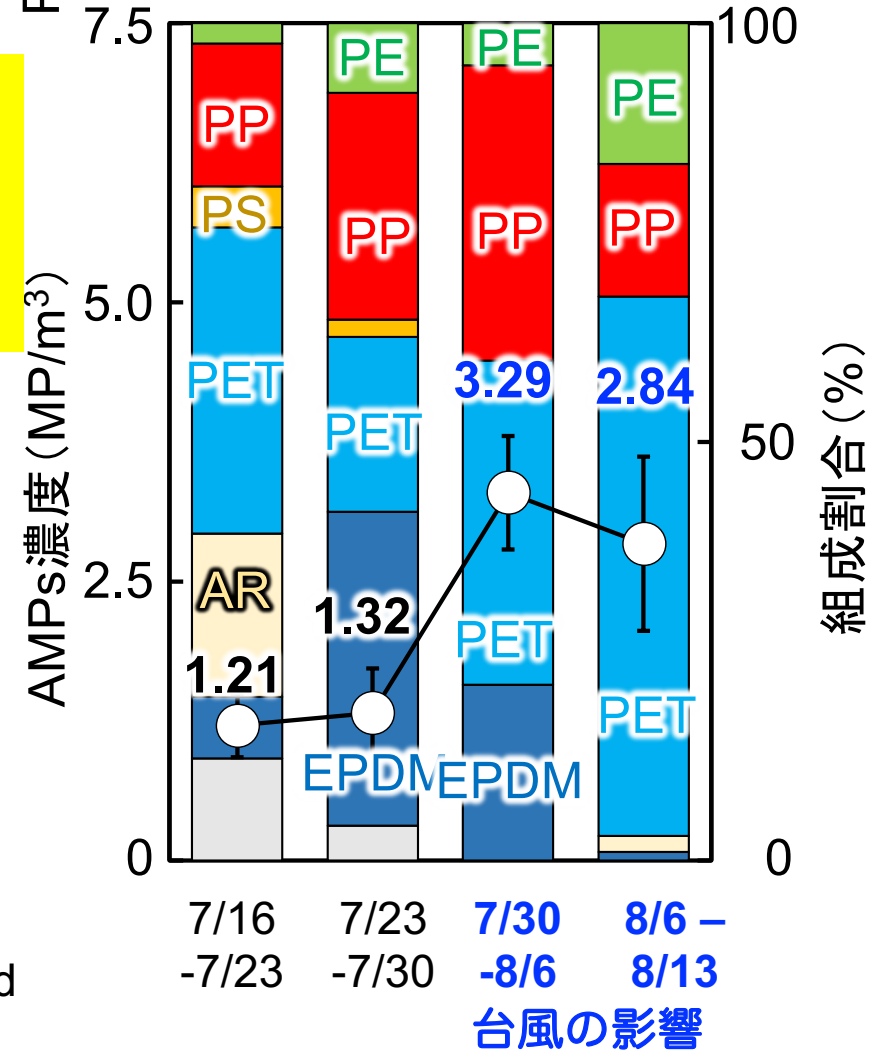
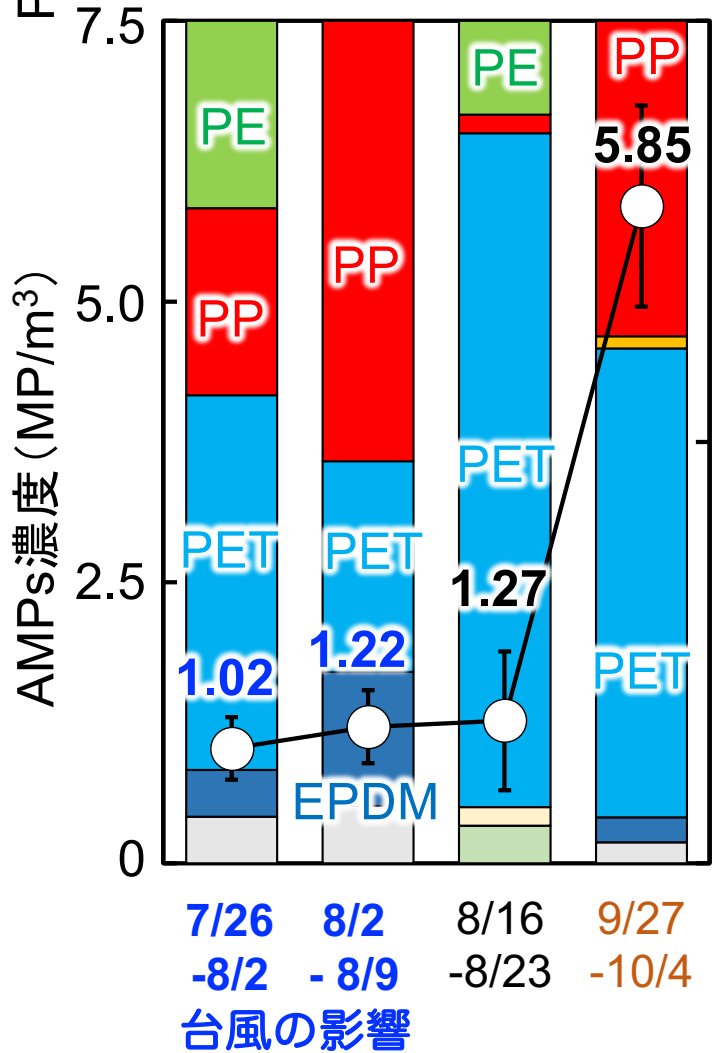
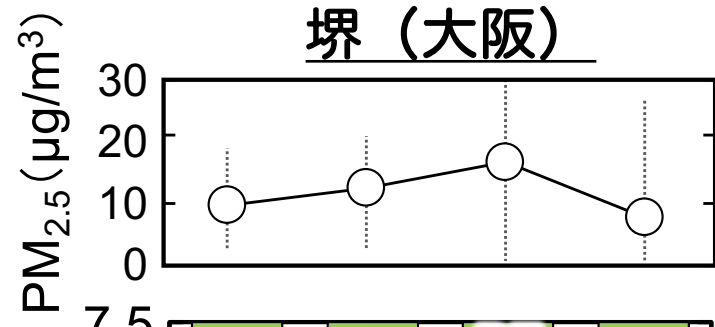
➤ 採取時にAMPsをろ過分離

↓
前処理時間の短縮
採取の簡便化

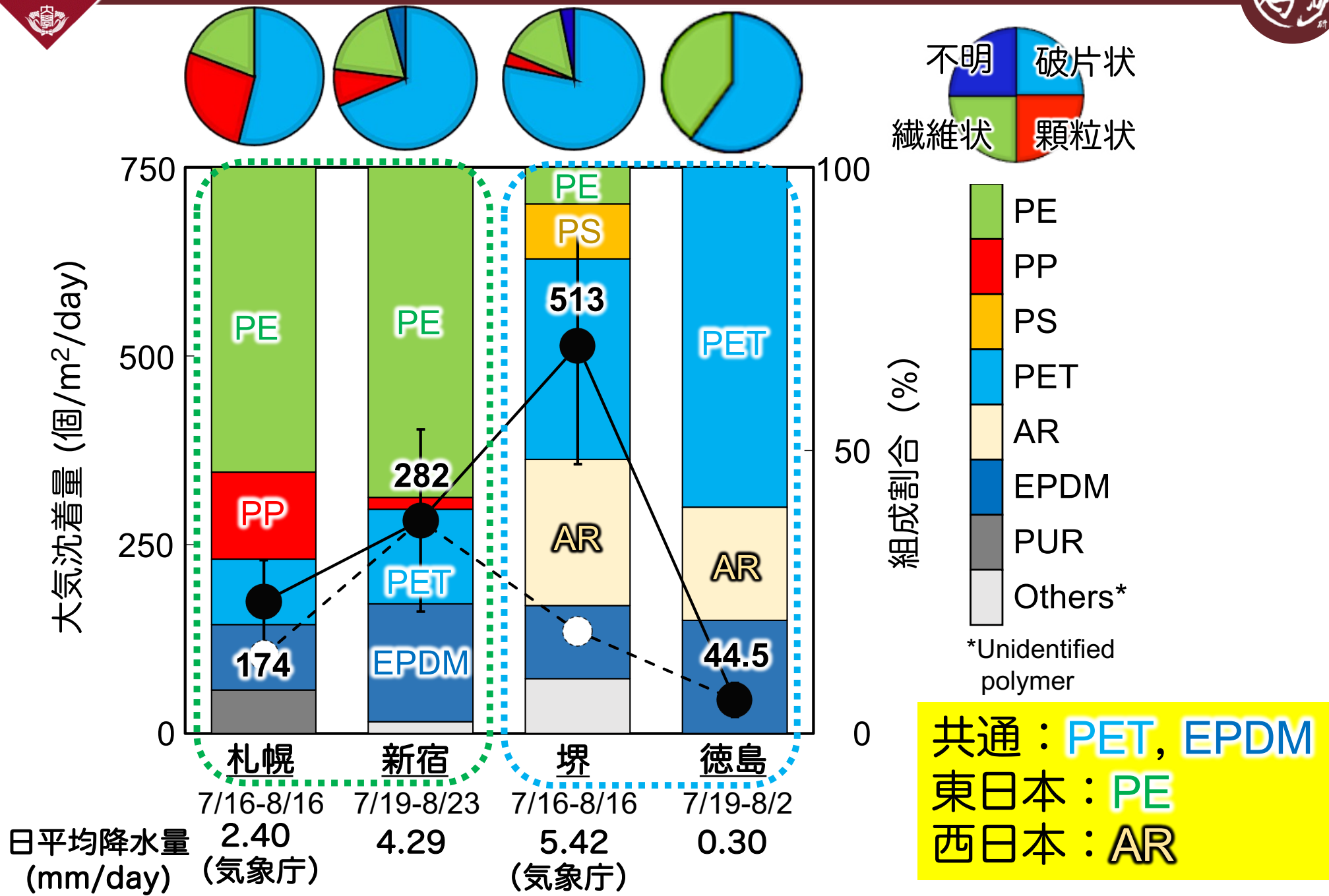
サブ1：都市大気（夏）エアロゾル



2021年
エアロゾル



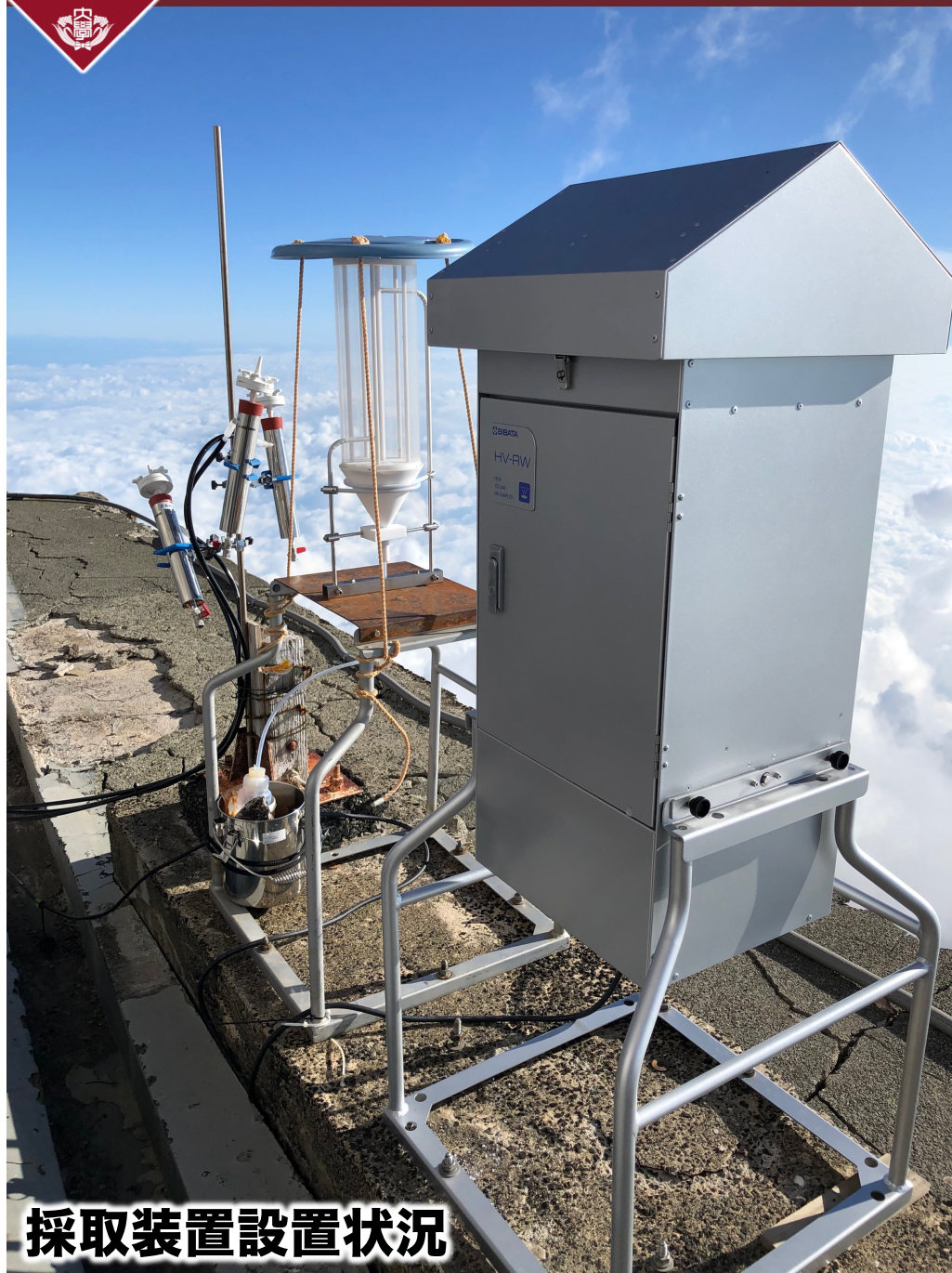
サブ1：都市大気 (夏) フォールアウト



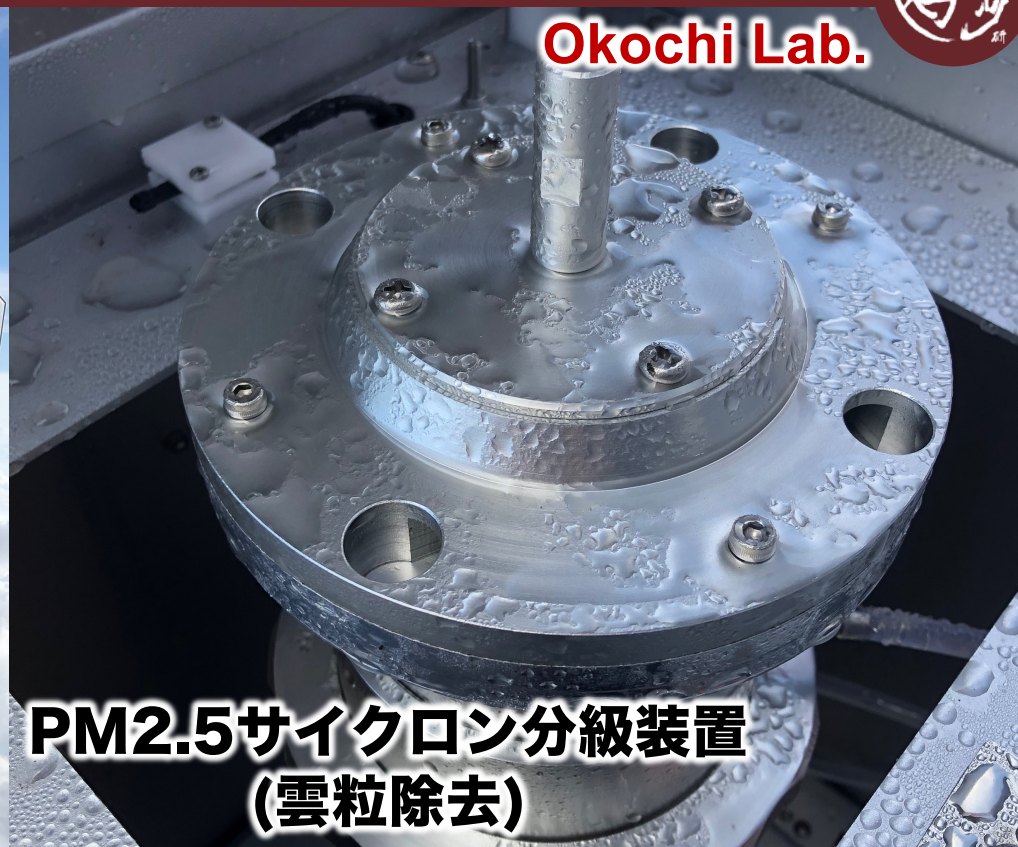
サブ1：自由対流圏大気中PM_{2.5}



Okochi Lab.



採取装置設置状況

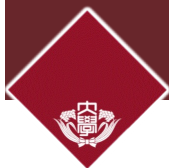


PM_{2.5}サイクロン分級装置
(雲粒除去)

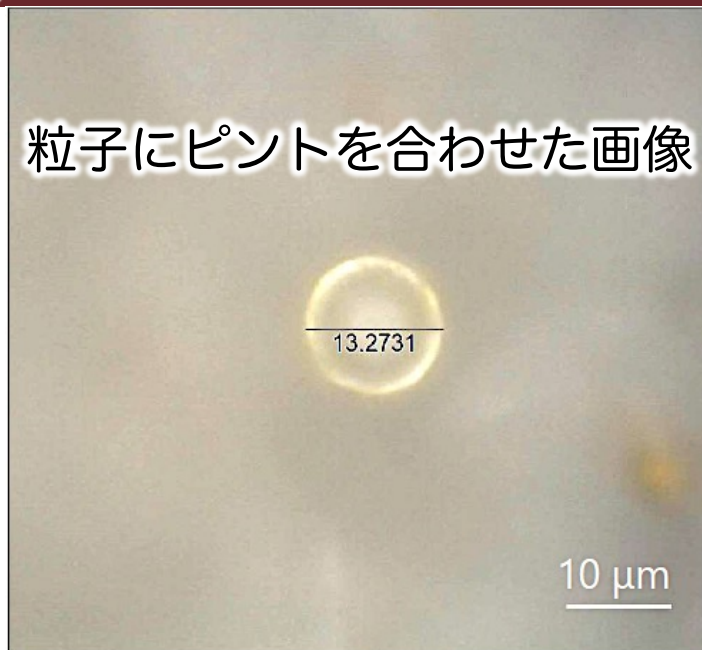


PM_{2.5}を採取した
テフロンフィルター

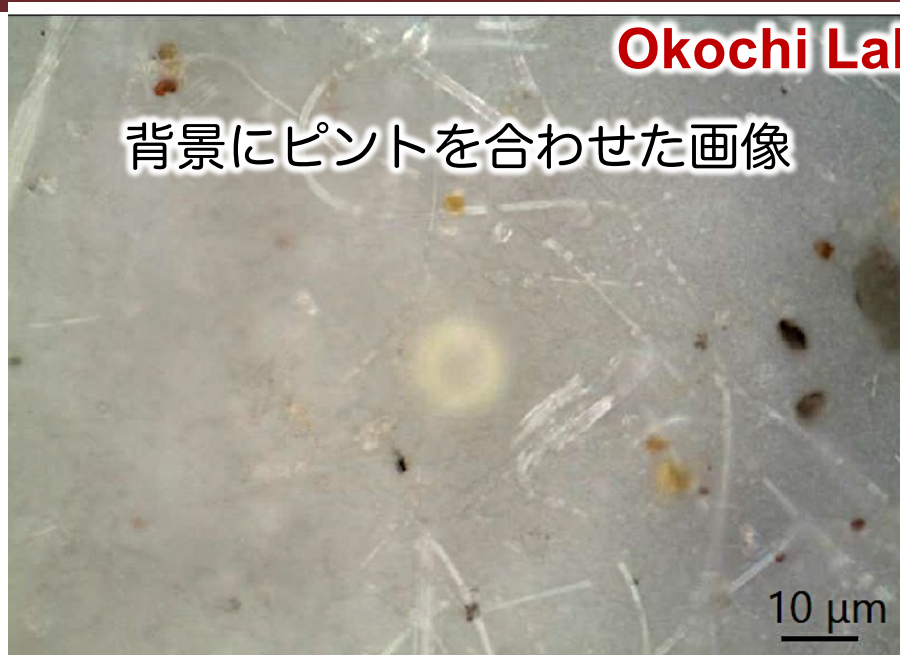
サブ1 : PM_{2.5}中AMPs



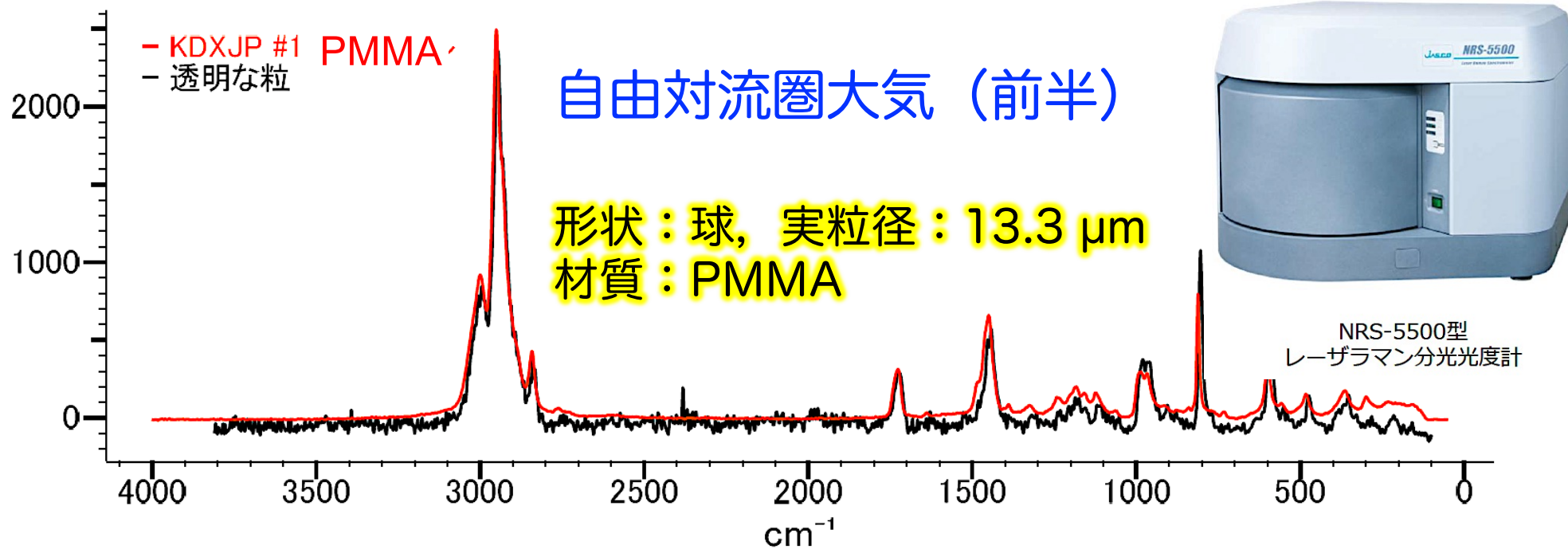
粒子にピントを合わせた画像



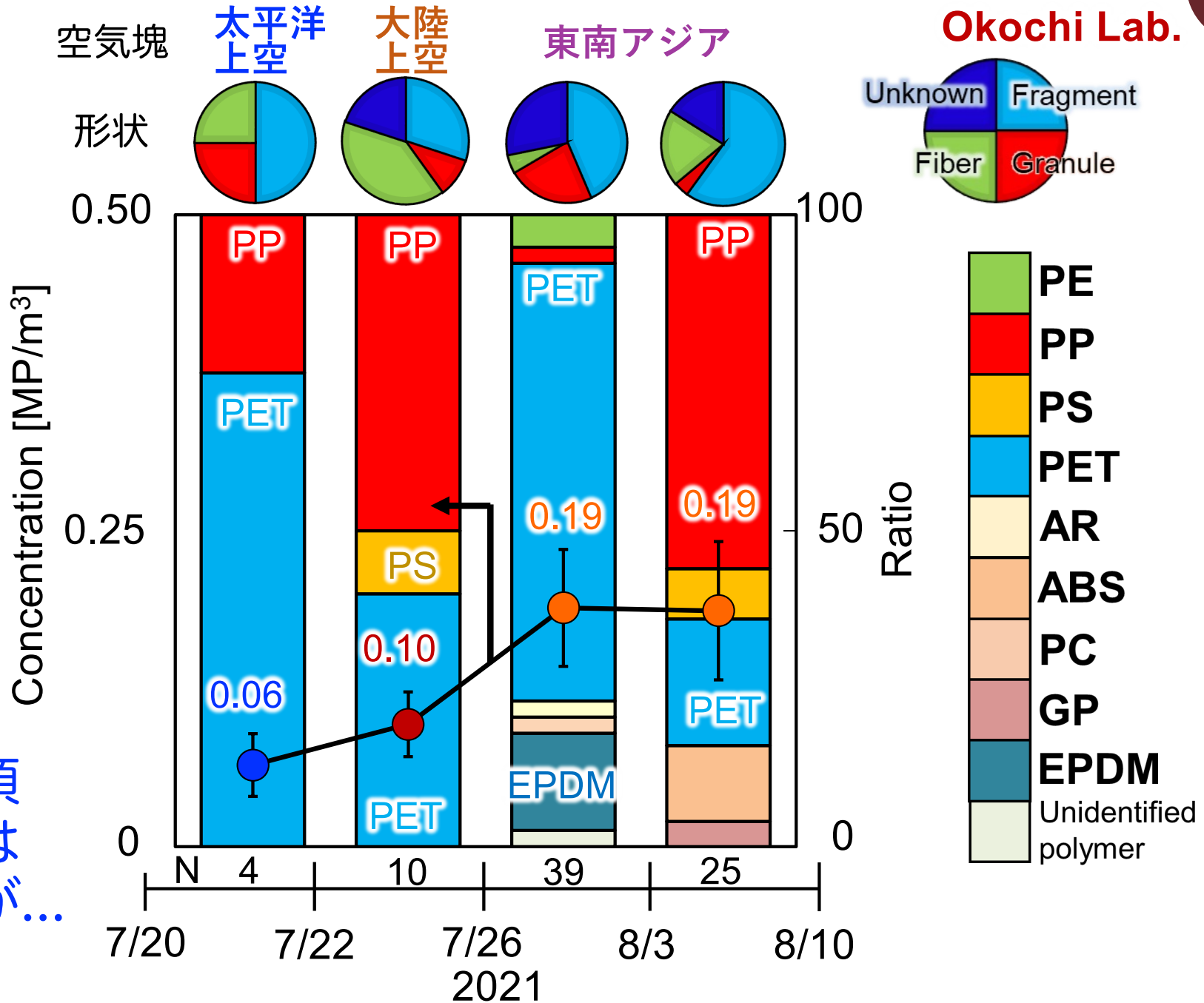
背景にピントを合わせた画像



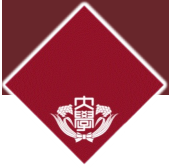
Okochi Lab.



サブ1 : AMPs in PM_{2.5}



サブ1：まとめ



Waseda University

Okochi Lab.



- ・サブミクロンサイズのMPs：前処理法 & 同定法を確立
ただし、回収率が必要

μFTIRスクリーニング法の改良

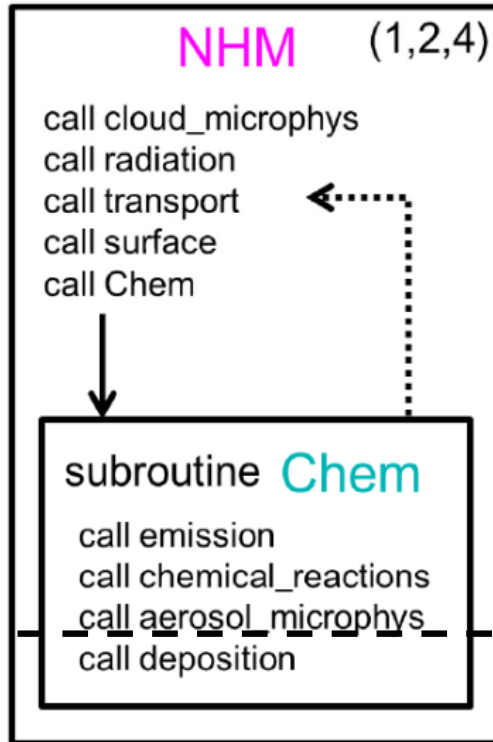
- ・都市，森林，熱帯，自由対流圏大気に存在
PM_{2.5}領域に存在
熱帯：微小領域にピークをもつ二山分布
国内都市大気濃度の10倍以上
- } 健康
リスク

海洋マイクロプラスチックの台風による陸域輸送

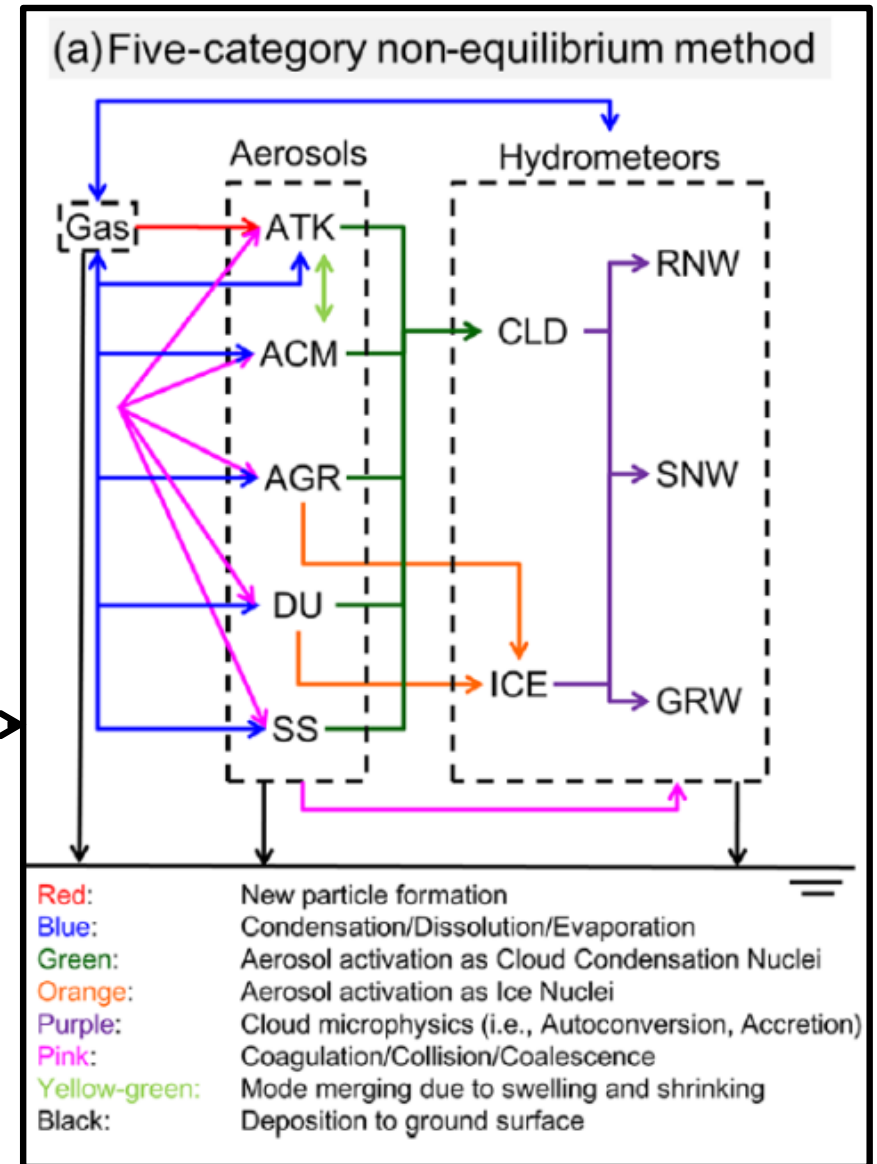
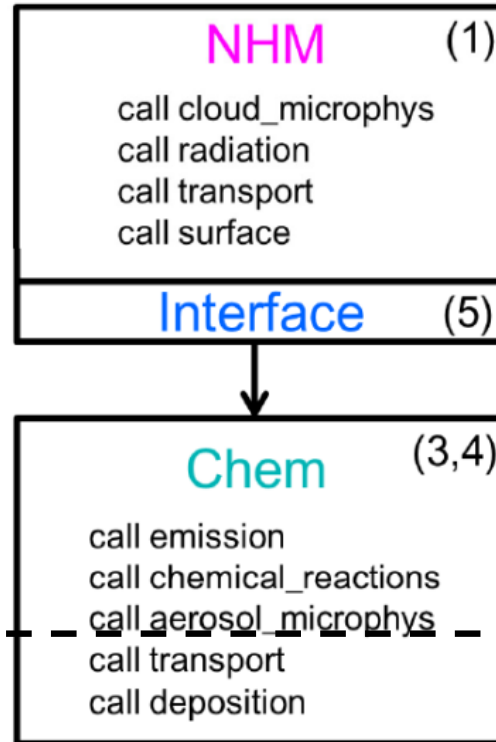
- ・主成分：海洋マイクロプラスチックと同様
PP, PE, PET, PS, EPDM, AR
ただし、地域差は大きそう → 起源/動態の解明急務
国内都市大気：地域比較

サブ2：気象庁領域気象化学モデル NHM-Chem

(a) Online coupled NHM-Chem



(b) Offline coupled NHM-Chem



- オンライン結合（気象フィードバックを考慮）
もしくはオフライン結合（マルチ気象モデル解析）
- ナノ粒子から粗大粒子の微物理過程（新粒子生成、凝縮、凝集成長、乾性・湿性除去）を陽に考慮
- 毒性研究にも活用可（PAH、放射性核種、AMPs）

サブ2：NHM-Chem AMPsスキームと計算例

	Physical properties		Mass concentrations						
			Origins			Chemistry			
Submicron mode ($\sim 0.1 \mu\text{m}$)	M_0	M_2	Fp	Ff	Fo	PE	PP	PS	PET
Supermicron mode ($\sim 1 \mu\text{m}$)	M_0	M_2	Fp	Ff	Fo	PE	PP	PS	PET
Giant mode ($\sim 10 \mu\text{m}$)	M_0	M_2	Fp	Ff	Fo	PE	PP	PS	PET

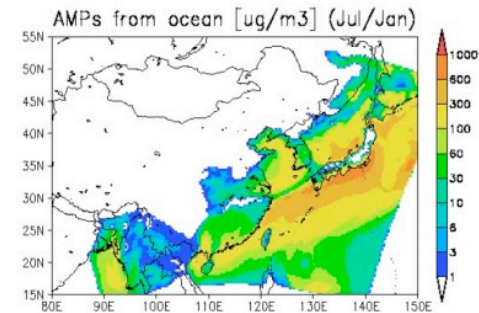
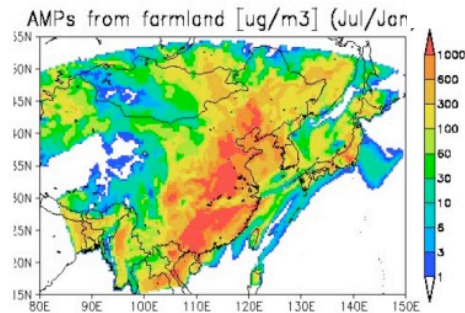
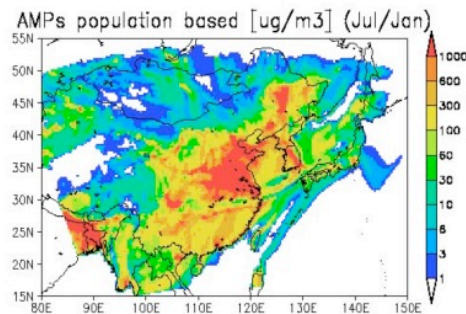
- 対数正規分布仮定 (N, D_g, σ_g を $M_0(=N), M_2(\propto S), M_3(\propto V)$)で規定。
- Fp, Ff, Foは発生源 (p: population, f: farmland, o: ocean) → CDV解析による領域収支評価に利用。
- PE, PP, PS, PETは、未実装。インベントリが構築されてから利用予定(香港大学と共同研究実施中)。

人口ベース
($D=0.1 \mu\text{m}$ 、単分散)

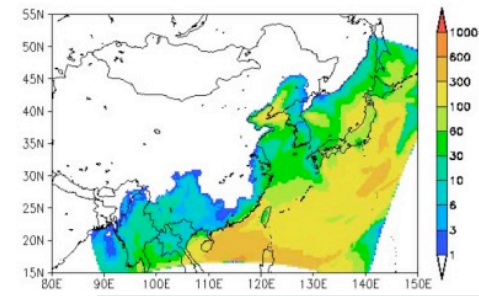
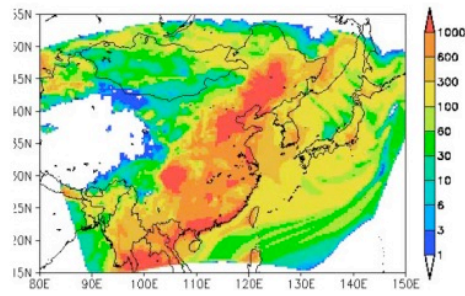
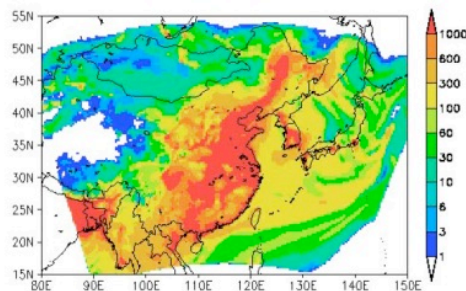
農地起源
($D=0.1 \mu\text{m}$ 、単分散)

海洋起源
($D=0.1 \mu\text{m}$ 、単分散)

夏季
(2015年7月)

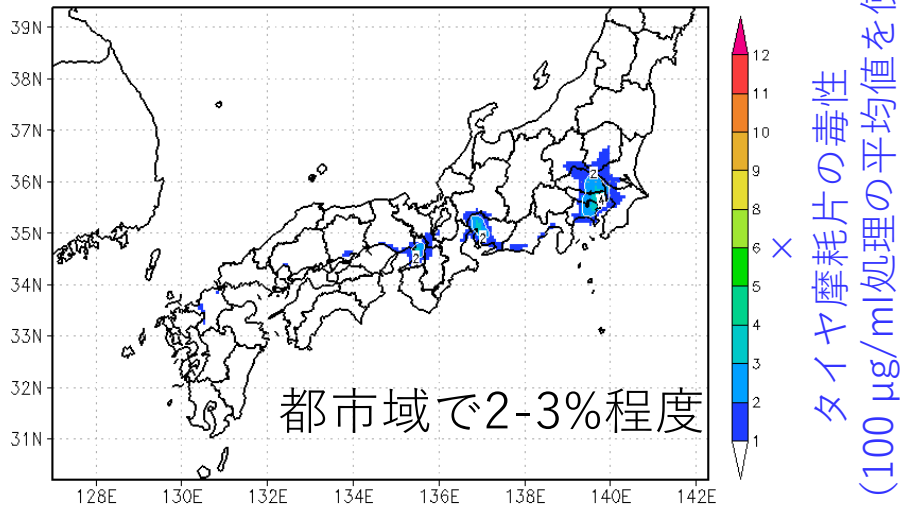


冬季
(2016年1月)

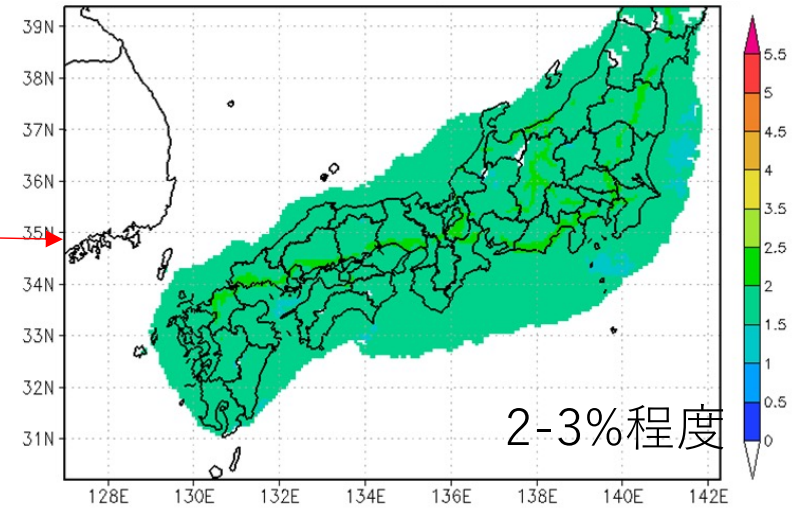


サブ2：自動車由来の粒子毒性の相対化

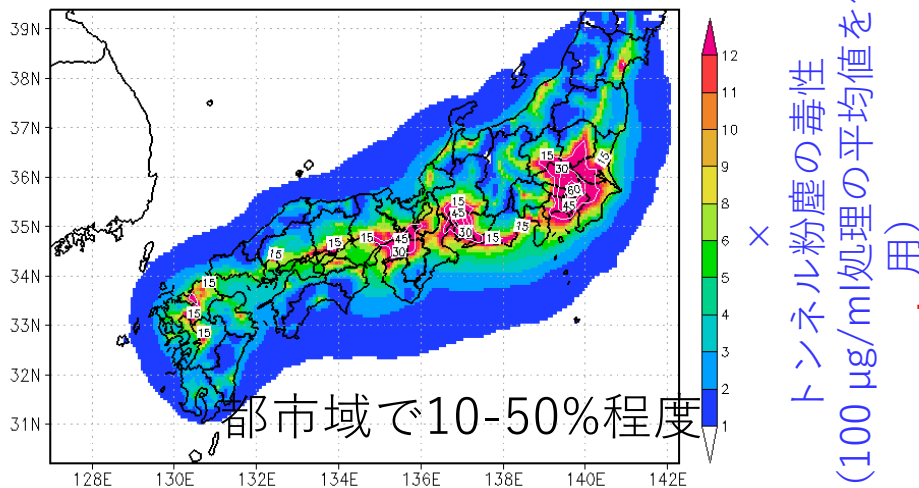
タイヤ摩耗片のPM_{2.5}濃度 (μg/m³)



自動車由来総粒子に対するタイヤ摩耗片の酸化ストレス誘導能に関する毒性 (%)

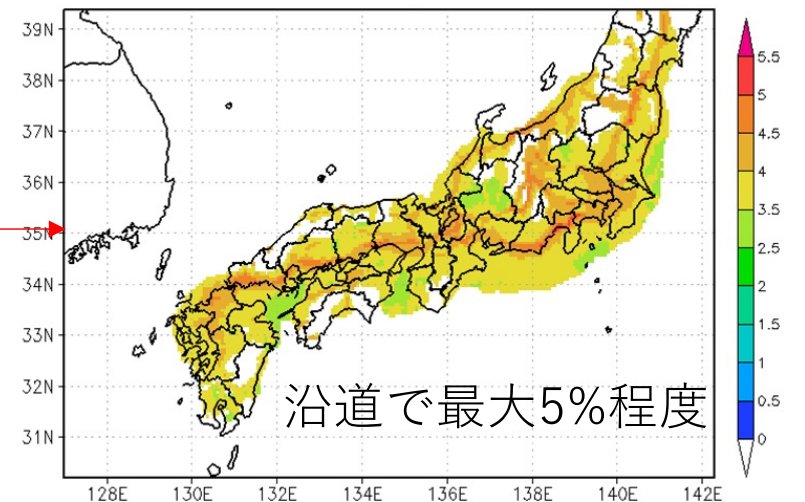


自動車由来の総PM_{2.5}濃度 (μg/m³)



比較

自動車由来総粒子に対するタイヤ摩耗片の炎症誘導能に関する毒性 (%)



サブ2：氷晶核活性に伴う気象変化

$$n_s (\# \text{ cm}^{-2}) = -\ln(1 - AF) / A (\text{cm}^2);$$

A = surface area of 1 particle

$$n_m (\# \text{ mg}^{-1}) = -\ln(1 - AF) / m_{\text{INP}} (\text{mg});$$

m = mass of 1 particle

$-\ln(1 - AF) \cong AF$; for $AF < 0.1$,

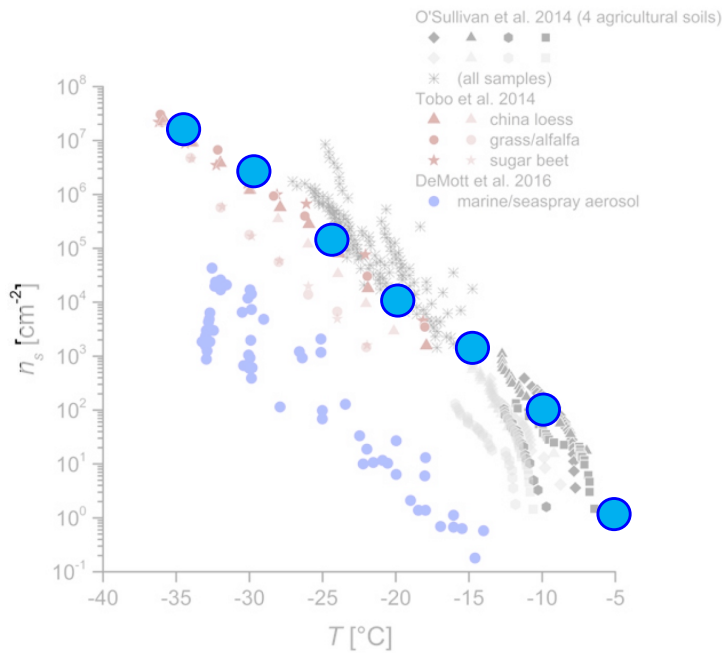
$$\Rightarrow n_s (\# \text{ cm}^{-2}) = \frac{AF}{A (\text{cm}^2)} = \frac{N_{\text{ice}}}{N_{\text{tot}} \times A (\text{cm}^2)} = \frac{N_{\text{ice}}}{A_{\text{total}} (\text{cm}^2)}$$

A_{total} = SA of polydisperse size distribution

For n_m , A_{total} is replaced with the equivalent mass distribution

- INAS実験値
- Chem予測値
- 気象モデルへ

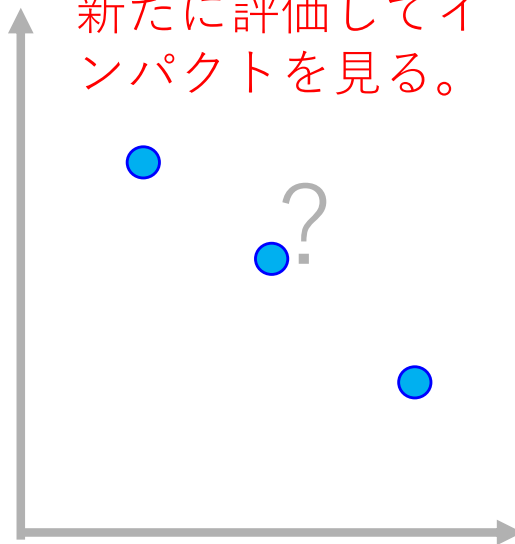
鉱物ダストの例



Kanji et al. (2017) Fig. 1-6

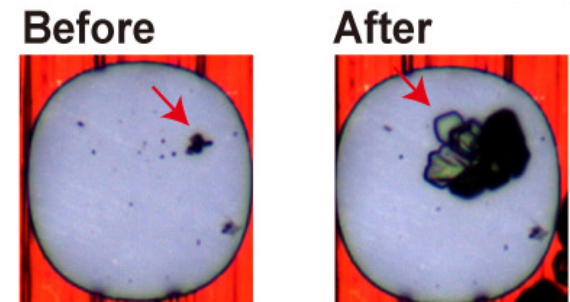
AMPs

新たに評価してインパクトを見る。



本研究

電顕による氷晶核能の評価例



Adachi, Kajino et al. (2022)

AMPs粒子を評価

(現在新宿サンプルを分析中、北極サンプルを分析予定)

NHM-ChemでAMPsの氷晶核能を通じた気象変化を計算

サブ2のまとめ

- 気象庁オンライン領域気象化学モデルNHM-Chemの開発と適用評価研究を取りまとめ ([Kajino, Adachi et al., 2021](#))、また新たにAMPsスキームを開発した (Kajino, Adachi, Okochi et al., in prep.)。現在、[サブ1](#)の富士山頂観測結果のモデル解析と、全国各地の大気濃度・降水量観測値との比較検証を実施中である。
- 主要AMPsの一種であるタイヤ摩耗片の排出インベントリを構築した。[サブ3](#)の毒性評価結果を用いて自動車由来の排気・非排気粒子の健康影響の相対強度評価を行った。タイヤ摩耗片の酸化ストレス誘導能 (HO-1) と炎症誘導能 (IL-6) は、自動車由来の総粒子に比べて十分小さい (2-5%程度) という評価になった。しかし今後EV導入により排気由来の粒子が減少すると、非排気由来の健康影響の重要性が増す可能性がある (Kajino, Ishihara, Okochi et al., in prep.)。
- 温湿度を制御できる小型チャンバーを開発し、電子顕微鏡による個別粒子の氷晶核能を評価可能とした ([Adachi, Kajino et al., 2022](#))。現在、[サブ1](#)の新宿試料、また[サブ2](#)で収集した北極試料のAMPs粒子を分析中である。AMPsの氷晶核能が分かれば、AMPsによる降水変化を計算することが可能となる。

[サブx](#)： [サブテーマ間連携](#)
[X et al.:](#) [本推進費の成果 \(謝辞あり\)](#)

サブ3：研究計画概要

道路粉塵（日本自動車研究所 萩野先生より分与）

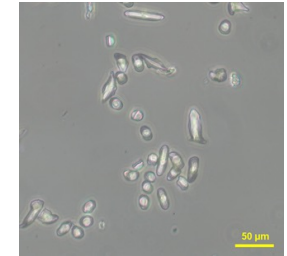
東京都内のトンネルにてバグフィルターにより捕集

100 μm ふるいにより分級し、エルボージェットにより5 μm 以下を気相分離



繊維状 PET（バインダー PET をユニチカ社から分与）

直径 14 μm のPET 繊維をクリオスタットにより細断、平均長 27 μm



都市型PM2.5（慶応義塾大学 奥田先生より分与）

リアルインパクト装備サイクロンにより、

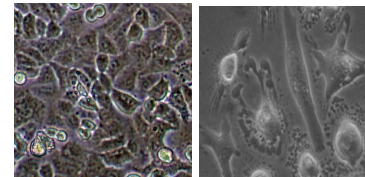
慶応義塾大学矢上キャンパス（横浜）にて捕集（2020年 4-5月）



細胞曝露実験

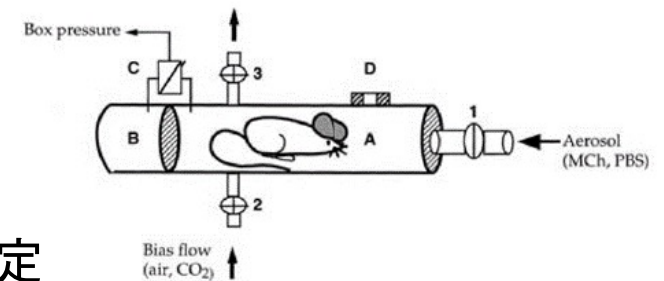
肺胞上皮細胞：障害評価

マクロファージ：炎症、酸化ストレス測定



マウス曝露実験

気道抵抗性の測定（プレスキモグラフ）、肺の炎症測定

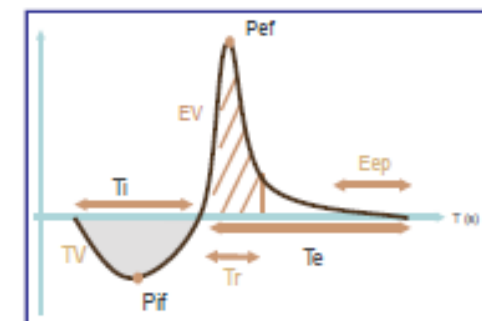


100 $\mu\text{g}/\text{mouse}/\text{day}$
鼻腔内投与（無麻酔）



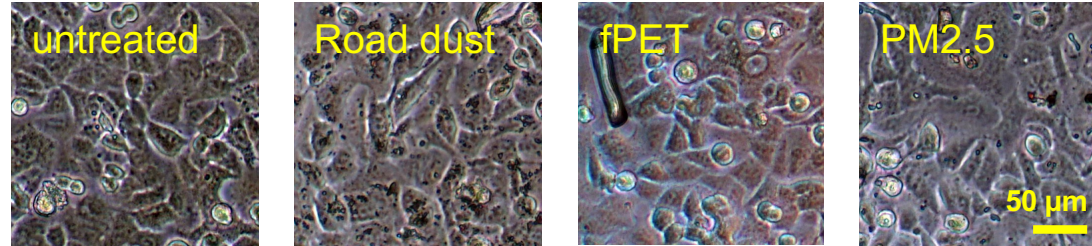
7日間連続投与

気道抵抗性測定
脱血後、肺摘出



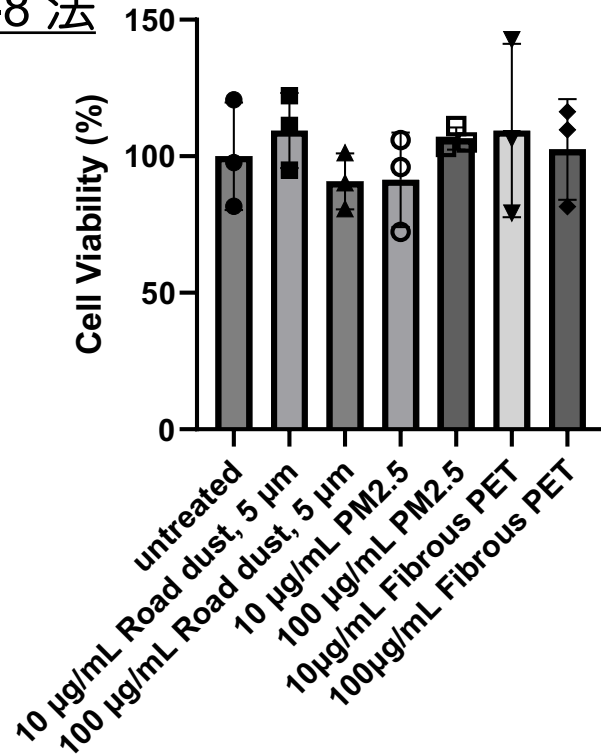
サブ3：微粒子の肺胞上皮細胞影響

A549：ヒト肺胞基底上皮腺癌細胞

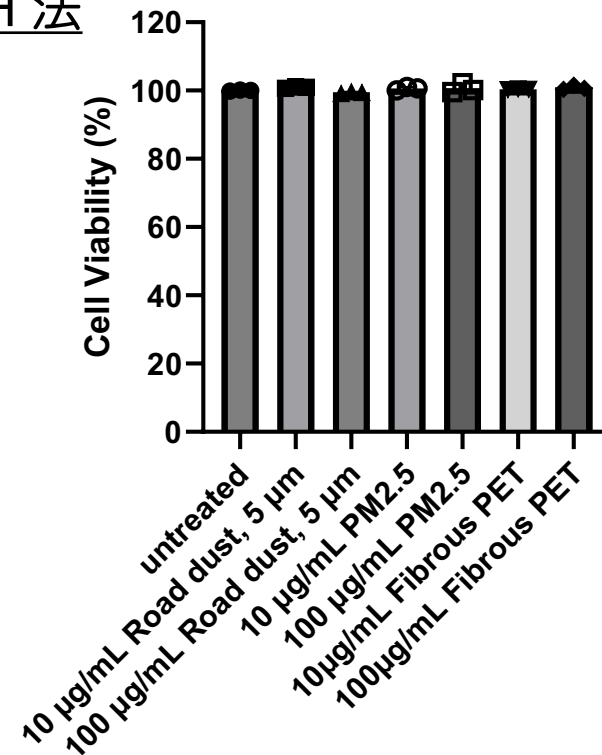


処置 24 時間後の形態

WST-8 法



LDH 法



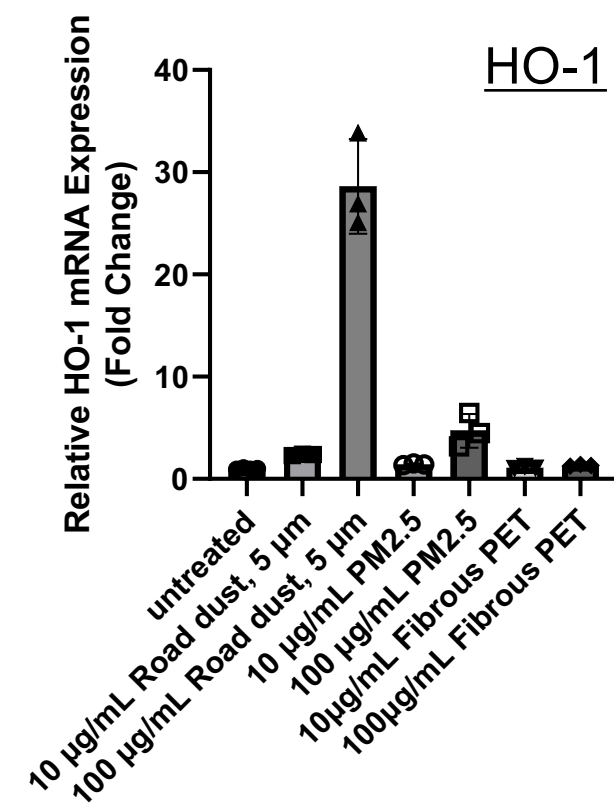
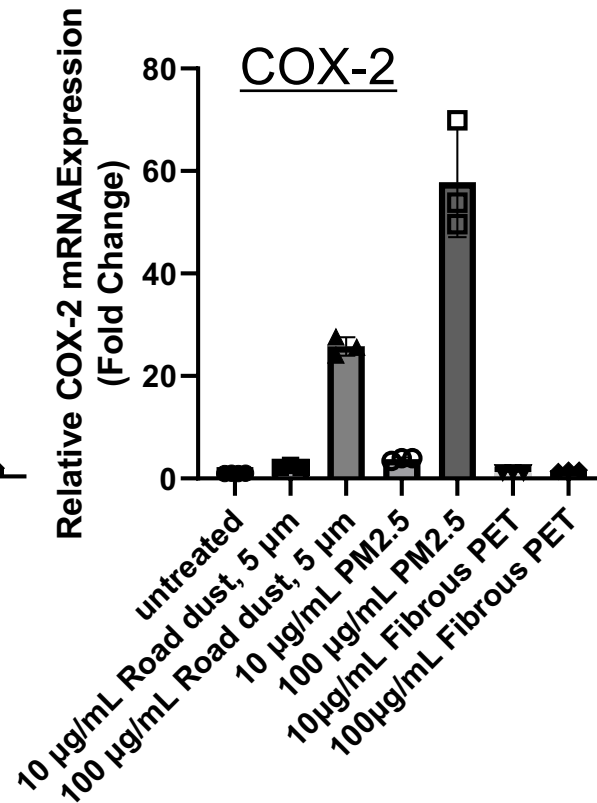
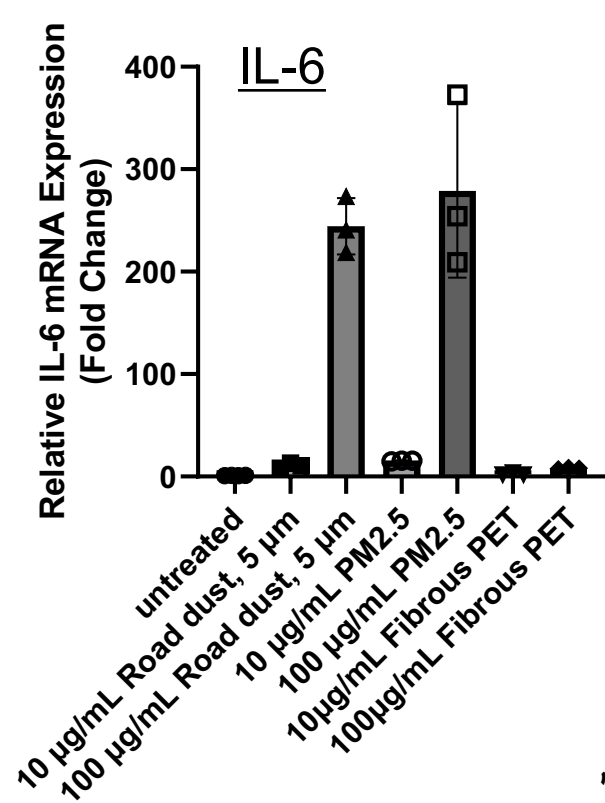
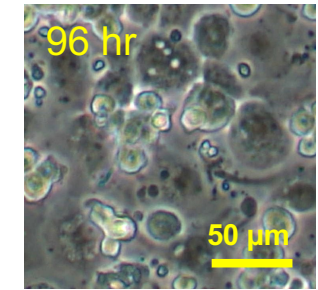
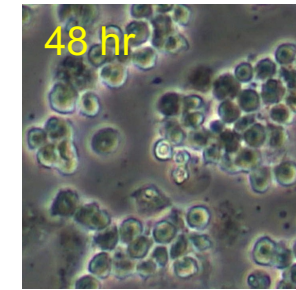
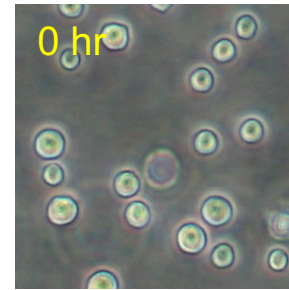
100 μg/mL までの微粒子は、肺胞上皮の細胞死を引き起こさない

サブ3：微粒子のマクロファージ影響

U937：ヒト単芽球様細胞株

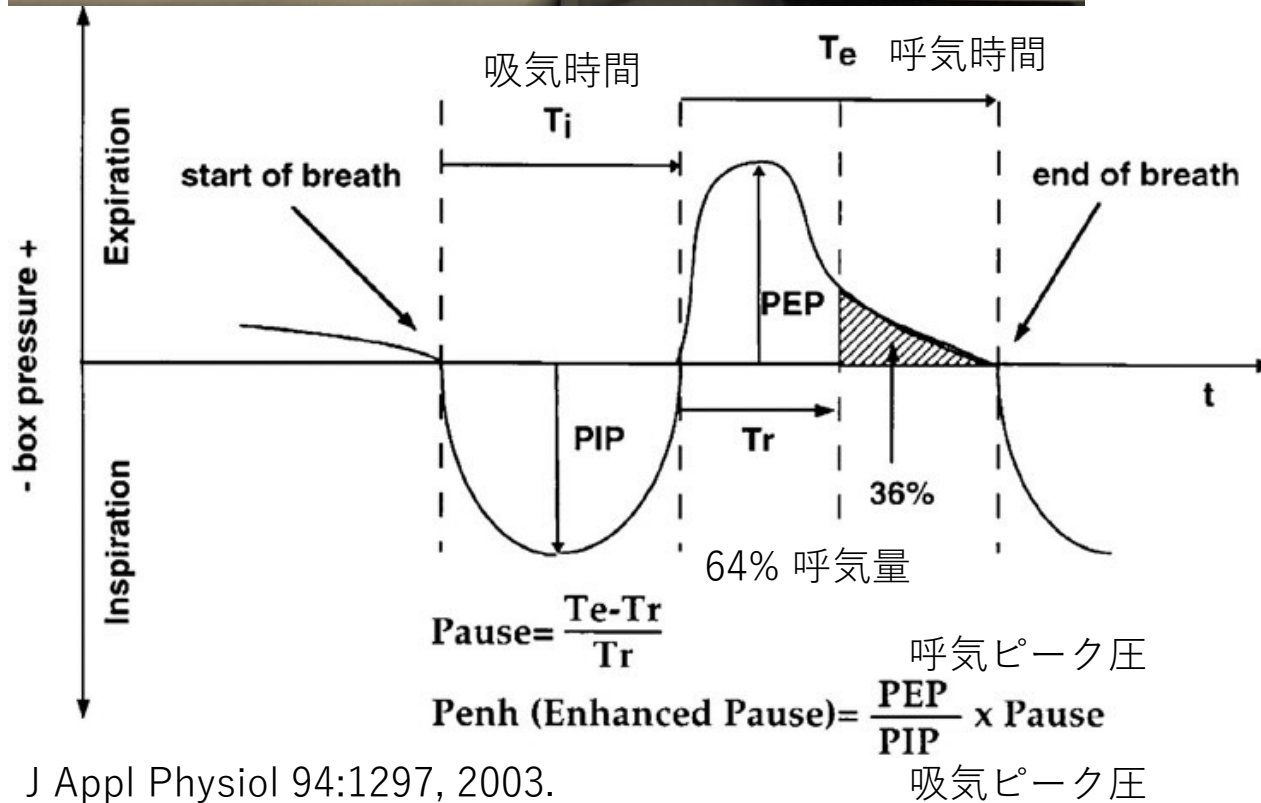
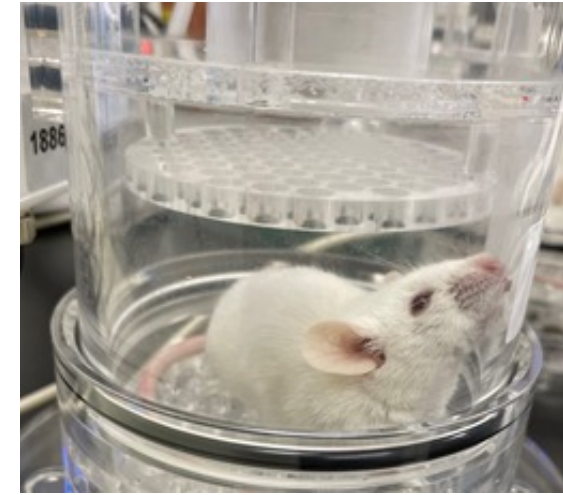
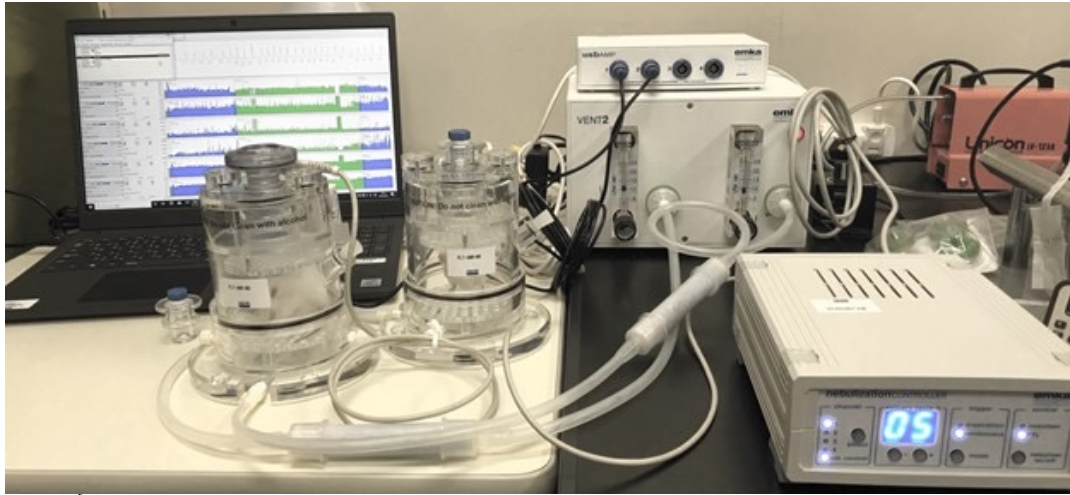
4 nM Phorbol 12-Myristate 13-Acetate (PMA) 処置により、マクロファージ様分化を誘導

PMA 処置後 96 時間培養した後、PM に曝露して 6 時間培養



- 道路粉塵、PM2.5 は炎症反応を惹起し、繊維状PETの炎症誘発能は低い
- 道路粉塵は強い酸化ストレス誘導能を示す

サブ3：気道抵抗の測定 Whole Body Plethysmography



PenH : 気道抵抗性の指標

気道抵抗性が上昇すると、息を一気に吐ききれず、呼気時間がテイリングする

→ 呼気時間 (T_e) に占める 64% 呼気量 (T_r) が減少し Pause の値は増加

→ 結果、PenH の値も増加

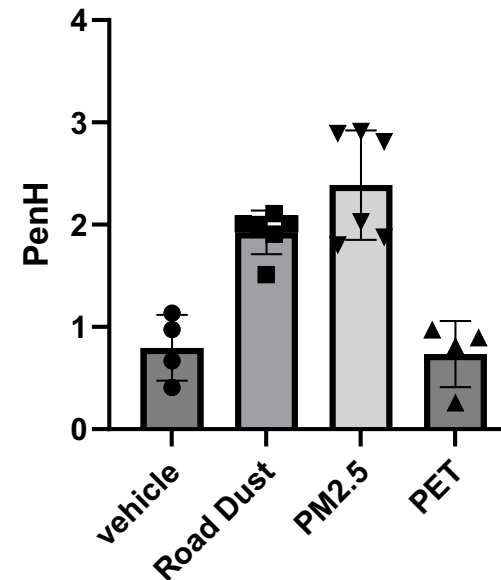
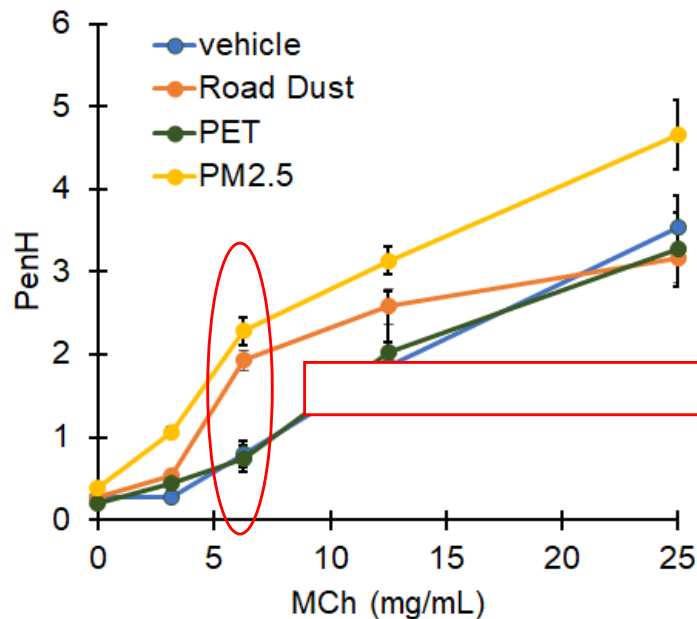
サブ3：PM 曝露の気道抵抗への影響

雄性 ICR マウス (8 週齢)

PM を蒸留水に 10 mg/mL の濃度で懸濁し、10 μ L を経鼻投与 (7日間)
(100 μ g/mouse/day for 7 days)



投与 7 日後に Whole Body Plethysmography にて PenH を測定
メタコリンをネブライズし、PenH のメタコリン濃度依存性を評価



- Road dust 曝露により、気道過敏性が上昇している
- Road dust の作用は PM2.5 と同程度である
- 繊維状 PET 曝露は気道過敏性に影響しない

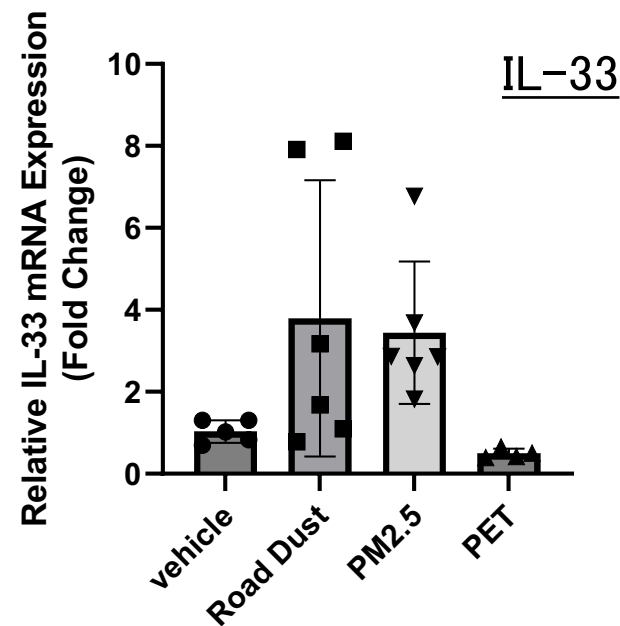
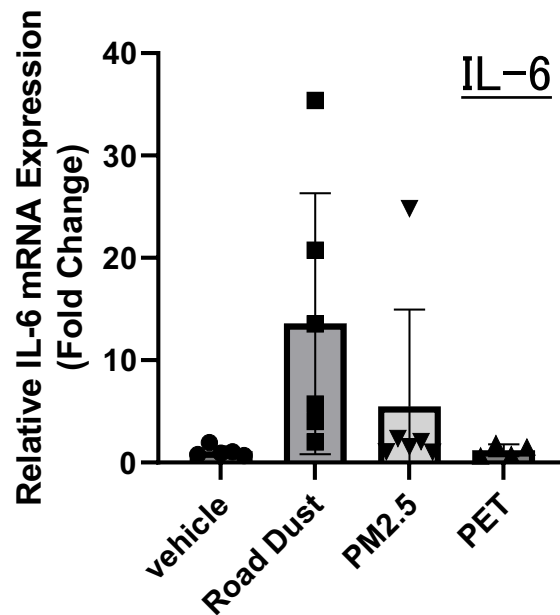
サブ3：肺における炎症性サイトカイン発現量

雄性 ICR マウス (8 週齢)

PM を蒸留水に 10 mg/mL の濃度で懸濁し、10 μ L を経鼻投与 (7日間)
(100 μ g/mouse/day for 7 days)



投与 7 日後に肺を摘出し、mRNA 発現を測定



- Road dust は肺の炎症を惹起し、その程度は都市型 PM2.5 と同程度である
- 繊維状 PET は、炎症に対して影響しない

研究進捗状況

【サブテーマ1】大気中マイクロプラスチックの分析法確立と実態解明

○計画の進捗状況

- ✓ 分析法確立と観測網構築: **計画以上の大きな進展**
- ✓ 海外: 北極、外洋は予備観測済み(**計画以上**)。東南アジアは今夏から(**計画通り**)
- ✓ PM2.5中AMPs乾式分級装置開発: 進捗に遅れ。代替法を検討
- ✓ 質量濃度、添加物・吸着物分析: **計画以上の大きな進展**

○目標達成の見通し

- ✓ PM_{2.5}中AMPs乾式分級装置開発を除けば、**目標達成は十分可能**
- ✓ 代替法として、ナノおよびマイクロプラスチックを合成し、屋外暴露により模擬大気中マイクロプラスチックを調整
- ✓ 大気中マイクロプラスチックの動態把握と実態解明研究という大目標に対しては**十分な成果**が得られる

研究進捗状況

【サブテーマ2】大気中マイクロプラスチックの環境動態モデリング

○計画の進捗状況

- ✓ AMPsモデル開発とタイヤ摩耗片を中心としたモデル解析研究：**順調に進行**
- ✓ 繊維状AMPsに特化した研究：遅滞

○目標達成の見通し

- ✓ 繊維状AMPsのモデル解析研究：繊維状に特化せず、**国内全種AMPsデータを活用**して包括的に研究
- ✓ 研究期間内に目標は達成可能
- ✓ ただし、論文の掲載は研究期間後にずれ込む可能性はある

研究進捗状況

【サブテーマ3】大気中マイクロプラスチックの呼吸器影響の解明

○計画の進捗状況

- ✓ 道路粉塵、繊維状PETの呼吸器影響評価：**順調に進行**
細胞試験、マウス曝露実験よりデータ取得済み。
- ✓ 人工太陽光による劣化繊維状PETの毒性評価：**新規項目**として追加。来年度中に疾患相互作用までの評価を終える
- ✓ 実大気中マイクロプラスチック：サブ1で乾式分級ができていないため、曝露実験は未着手

○目標達成の見通し

- ✓ 道路粉塵や繊維状PET：目標達成の見通し
- ✓ 劣化PETに：**計画以上**の進展
- ✓ 道路粉塵・繊維状PET・都市型PM2.5との比較検討：
マイクロプラスチックの健康影響が考察可能
- ✓ 実大気中マイクロプラスチック：サブ1の進捗次第
分離できた場合に備えて測定系の準備は終了

環境政策への貢献

1. 迅速分析法の確立と実態に関する知見集積

既往研究では手法は不統一であり、大気中濃度はバラツキが大きい(0.01–5650 MP m⁻³、Revell et al., 2021)。本研究では、統一手法を用いて国内外で観測を行い、環境基準制定を制定する際に根拠となる基礎情報(個数および質量濃度、大気沈着量、実粒径、空気動力学径分布、ポリマー組成、形状、添加剤・吸着剤濃度)を提供する。

2. 信頼性の高い動態モデルの開発

既往研究モデルでは、エアロゾル沈着スキームは不確実性が高い。本研究では、北半球～アジア領域ではあるが、大気降水量、大気濃度、空気動力学径分布の観測値を活用し、信頼性の高い収支を見積もる。信頼性の高い発生源情報を提供することで環境行政に貢献する。

3. 健康影響に関する知見集積

本研究では、道路粉塵曝露により炎症と気道過敏性の亢進が生じることが明らかになり、繊維状PETについても道路粉塵ほどではないが、炎症惹起能を有する。添加剤、吸着物、ナノプラスチックについても検討し、健康影響に関する知見を集積する。細胞・動物試験で得られた毒性ポテンシャルからヒトに応用する手法を確立する。

研究成果の発表状況

1, 査読付論文:

目標: 3年間で10報

実績: 令和3年~令和4年8月 7報

- ✓ M. KAJINO, K. ADACHI (18th), and 21 authors, Geosci. Model Dev., 14, 2235-2264 (2021) (IF: 6.892)
- ✓ M. KAJINO, and 15 authors, Atmos. Chem. Phys., 22, 783-803 (2022) (IF: 7.197)
- ✓ K. ADACHI, M. KAJINO (14th), and 17 authors, J. Geophys. Res., 127, e2021JD035657 (2022) (IF: 4.261)
- ✓ A. YAMAGAMI, M. KAJINO, and T. MAKI, J. Geophys. Res., 127, e2022JD036595 (2022) (IF: 4.261)
- ✓ K. ADACHI, N. OSHIMA, N. TAKEGAWA, N. MOTTEKI, and M. KOIKE, Communications Earth & Environment (2022) (IF: 7.290)
- ✓ Ishihara N, Okochi H (6th), Ishihara Y (11th) and 11 authors. J Toxicol Sci. 47(5):201-210, 2022. (IF=2.196)
- ✓ Kono M, Okochi H (6th), Tokoro C, Takaishi M, Ikeda H, Ishihara Y (10th). Chemokine expression in human 3-dimensional cultured epidermis exposed to PM2.5 collected by cyclonic separation. Toxicol Res. doi: 10.1007/s43188-022-00142-4. (IF=3.524)

研究成果の発表状況

2. 学会発表：目標：3年間、実績：令和3年～令和4年8月
目標：国内学会50回、国際学会20回
実績：国内学会26回、国際学会11回
3. 国民との対話実績：令和3年～令和4年8月
実績：15回
4. マスコミなどへの報道・発表：令和3年～令和4年8月
実績：23回
5. 受賞など
実績：2回
 - ✓ 学生口頭発表賞：吉田昇永、大河内博、速水洋、新居田恭弘、小林華栄、浦山憲雄、緒方裕子、勝見尚也、皆巳幸也、宮崎あかね、竹内政樹、戸田敬、三浦和彦、加藤俊吾、小林拓、和田龍一、高田秀重、第63回大気環境学会年会（2021）
 - ✓ 学生優秀発表賞：梶川友貴、梶野瑞王、大河内博、須合俊貴、内山竜之介、荒井豊明：第26回大気化学討論会（2021）

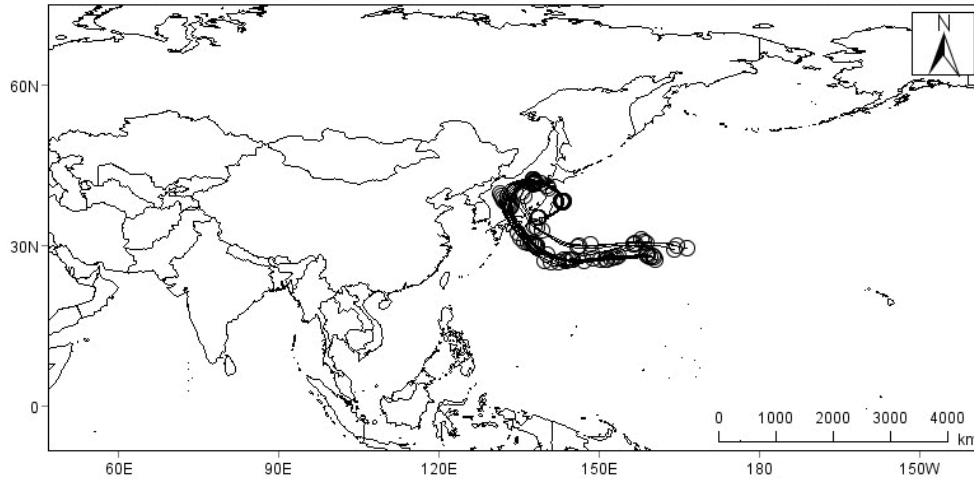
サブ1 付録

富士山頂へ流入する空気塊 2021



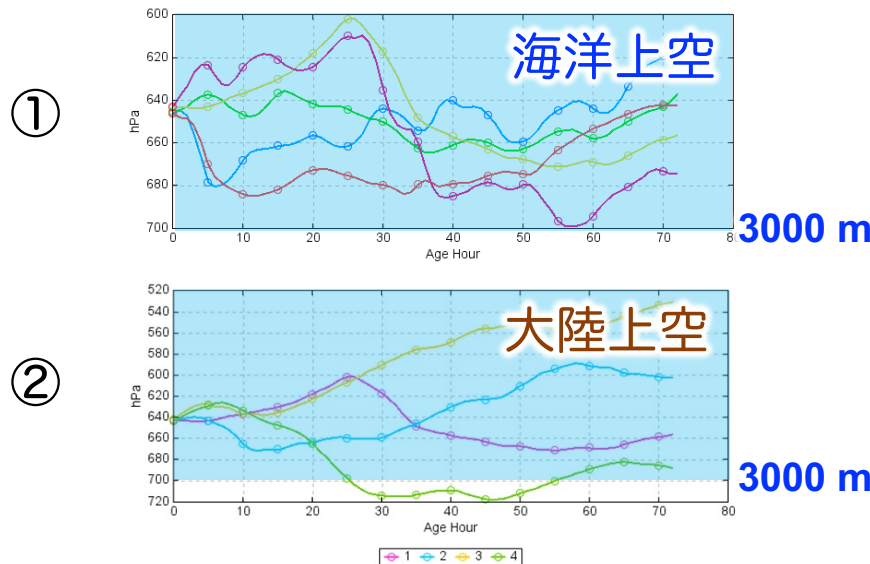
水平方向の空気塊解析

21/7/20 1800_7/21 0600

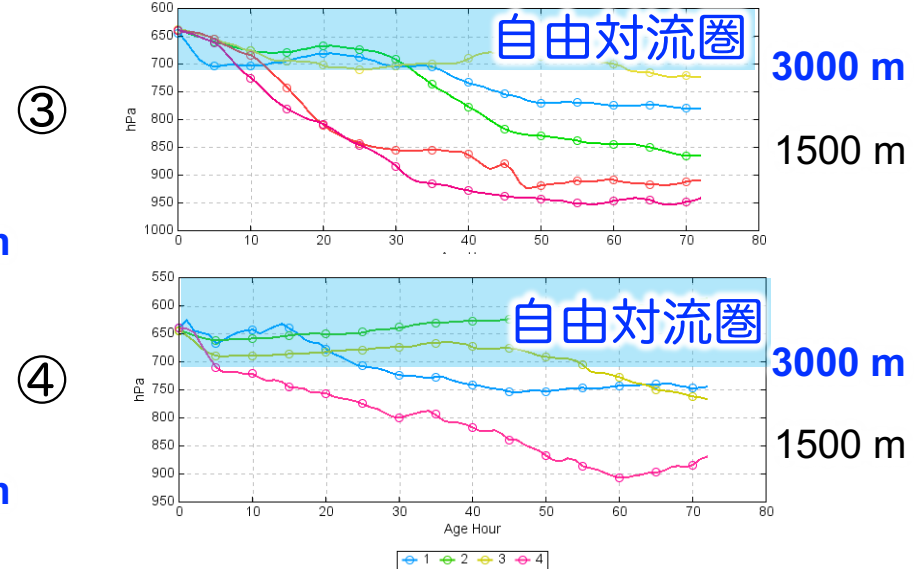


- ✓ 採取期間の前半
 - ① 太平洋上空(7/20-23)
 - ② 大陸上空 (7/24-26)
- ✓ 採取期間の後半
 - ③ 東南アジア(8/2)
 - ④ 東南アジア(8/6-9)

採取期間の前半：自由対流圏内



採取期間の後半：大気境界層輸送

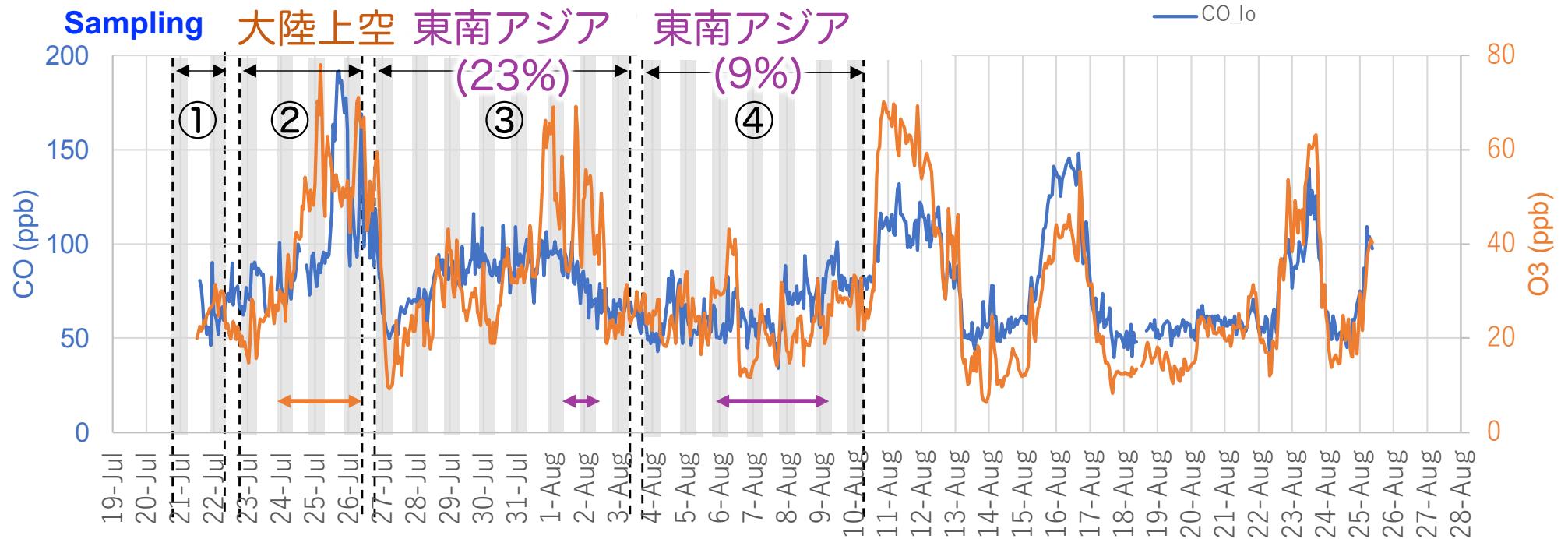
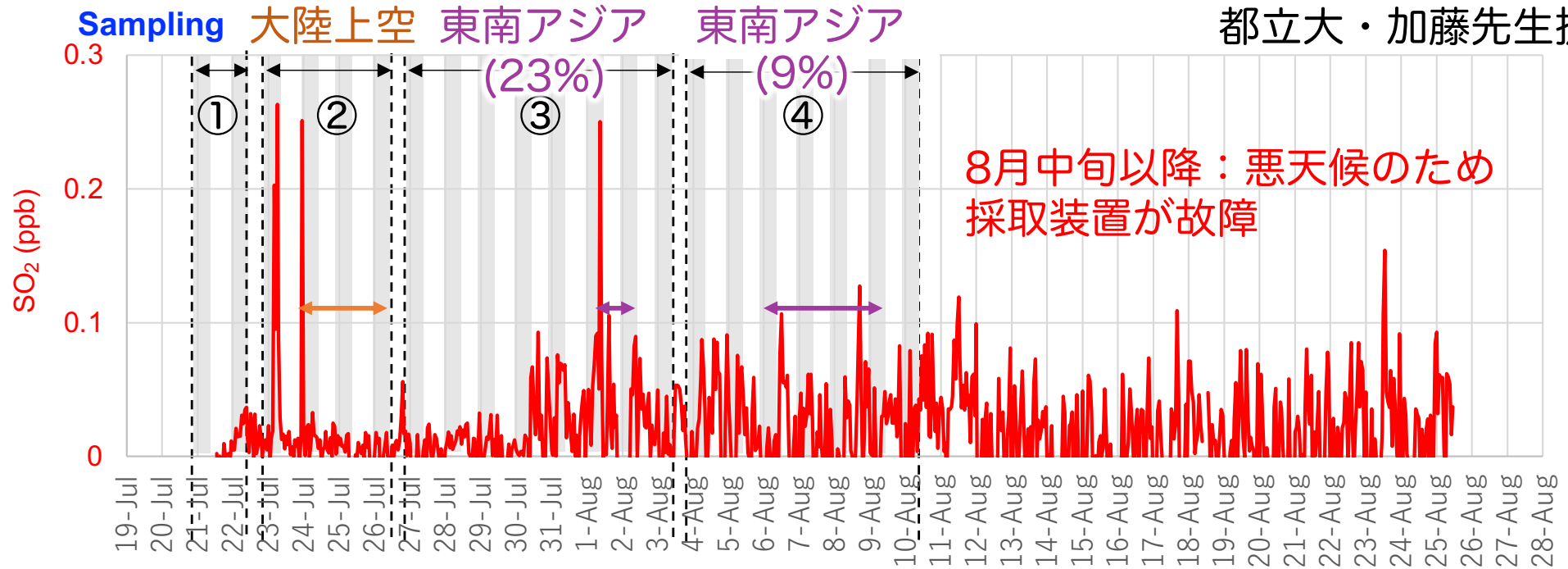


日本近海の太平洋上の自由対流圏大気

東南アジア・南太平洋からの地上大気

観測期間中の富士山頂における大気汚染状況

都立大・加藤先生提供

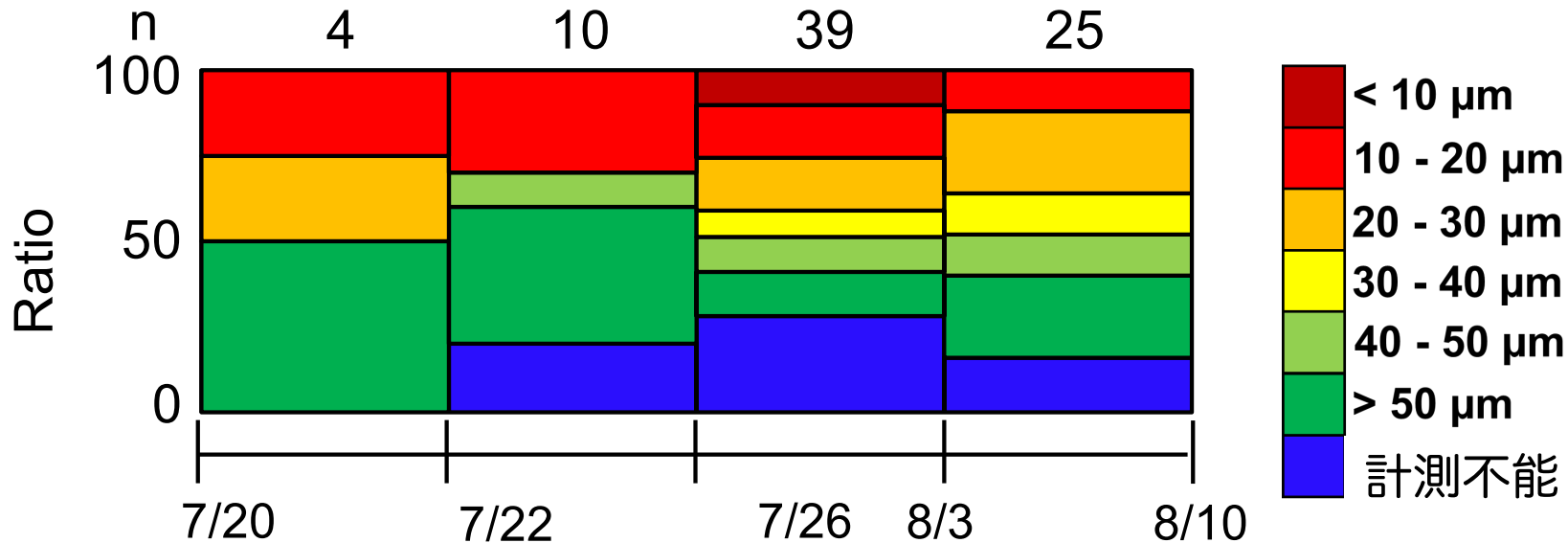


PM_{2.5} : 実粒径分布

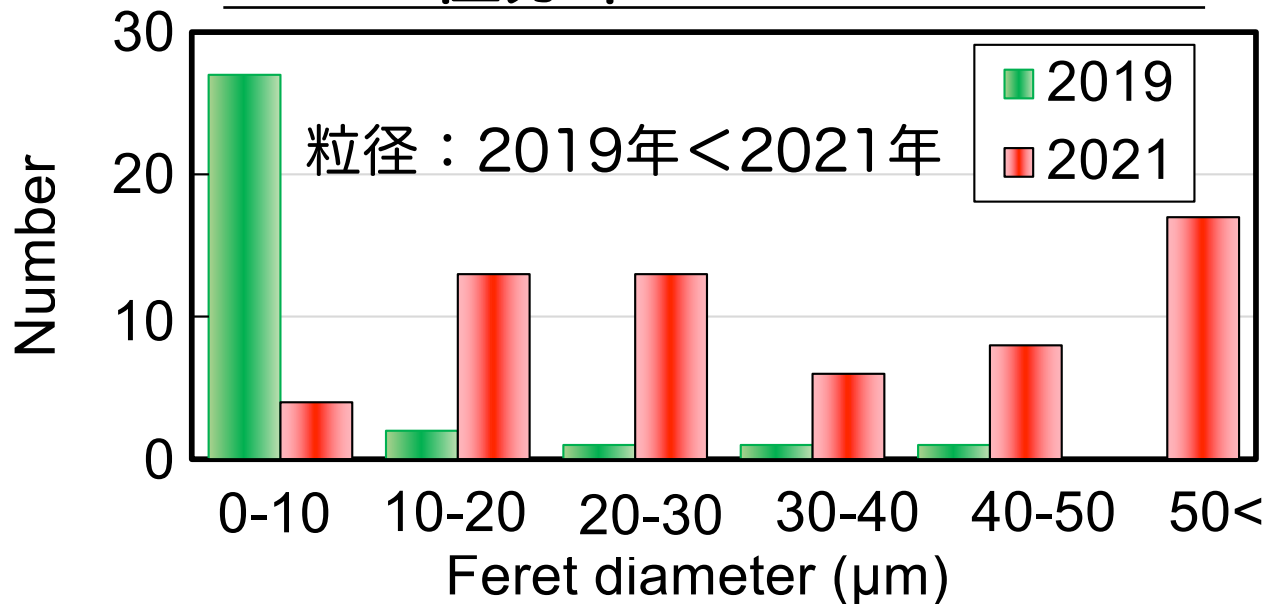


Okochi Lab.

フェレ径の変化 (2021)



フェレ径分布: 2019 vs. 2021



- ✓ 計測方法の違い?
2019: μRaman
2021: μFTIR
- ✓ 雲粒の影響?
2019: 小
2021: 大
- ✓ 台風の影響
2019: あり
2021: なし

AMPs : 地球規模汚染



PM_{2.5}

バックグラウンド 0.06 個/m³ Okochi Lab.

2021年

濃度：低
粒径：中
種類：小

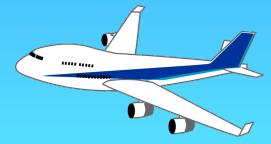
新宿：0.23 - 2.17 個/m³ (夏~冬)
大阪：0.17 - 1.80 個/m³ (夏)



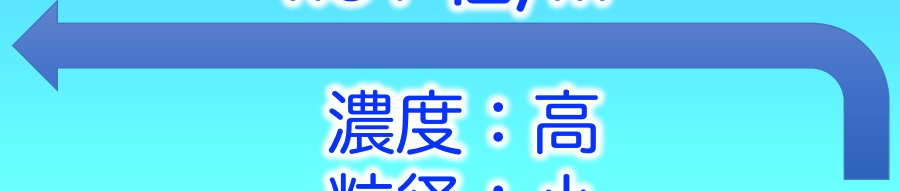
東アジア
東南アジア 0.19 個/m³



濃度：中
粒径：大
種類：中



4.91 個/m³ 2019年



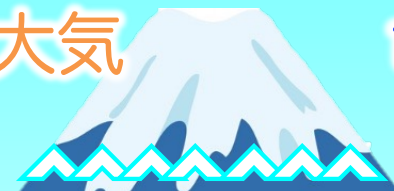
濃度：高
粒径：小
種類：多

台風



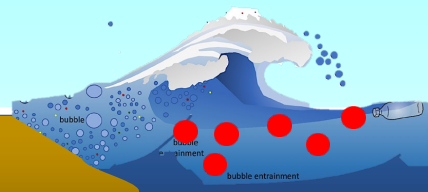
越境大気汚染

国内都市大気
に匹敵？



台風は海洋マイクロプラを大気を通じて陸域に運ぶ重要な経路？

都市域

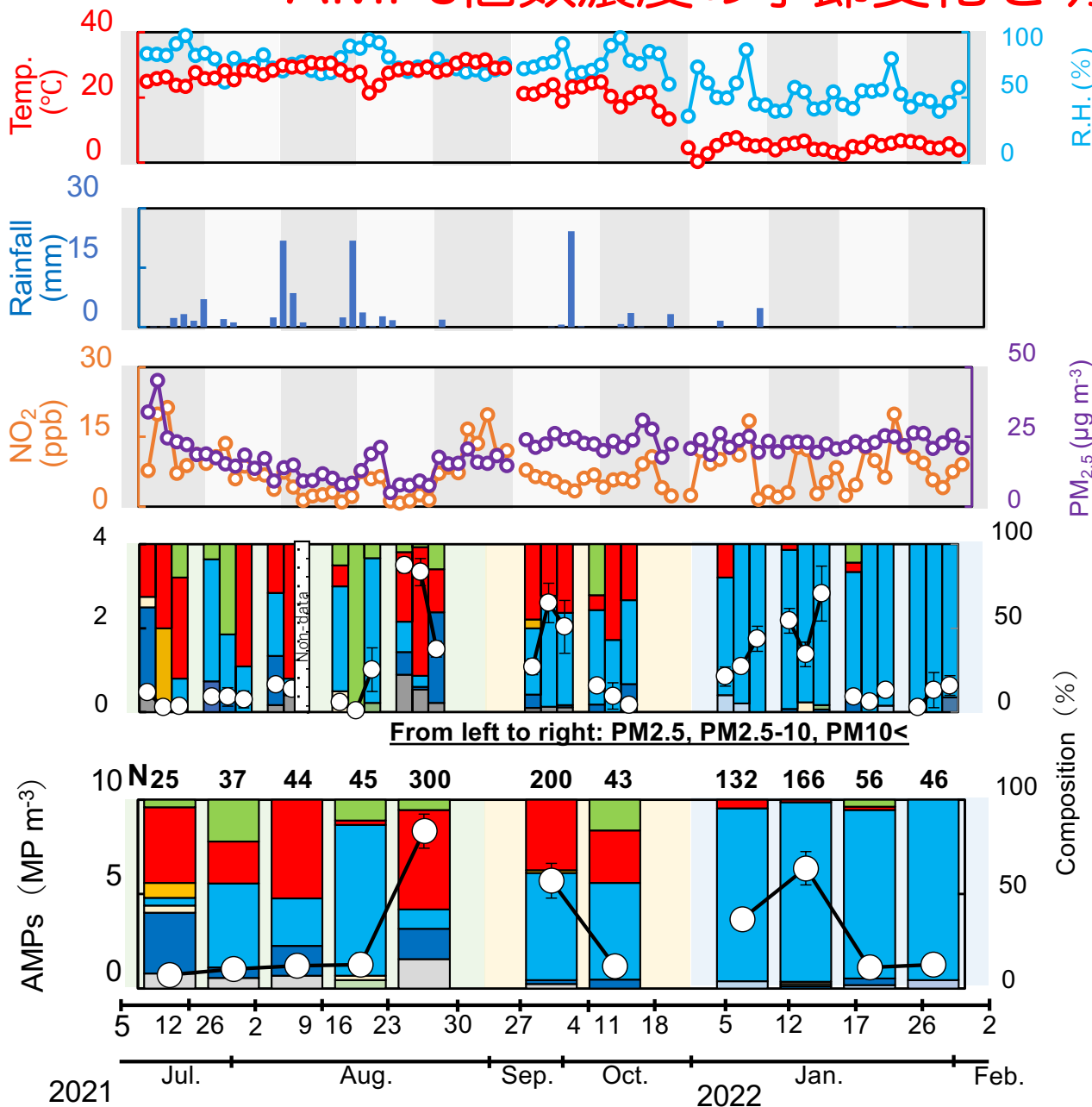


● AMPs

新宿：都市大気AMPsの季節変化



AMPs個数濃度の季節変化を明らかにしました



季節	AMPs (MP m ⁻³)	
	Total	PM _{2.5}
夏	2.51 ± 3.26 (0.73~8.34)	1.04 ± 1.38 (0.23~3.50)
秋	3.44 ± 3.21 (1.17~5.71)	0.85 ± 0.32 (0.63~1.08)
冬	3.11 ± 2.47 (1.12~6.37)	0.87 ± 0.92 (0.11~2.17)

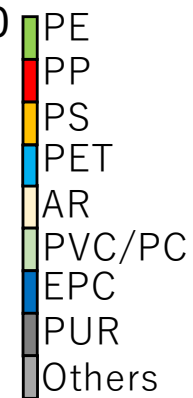
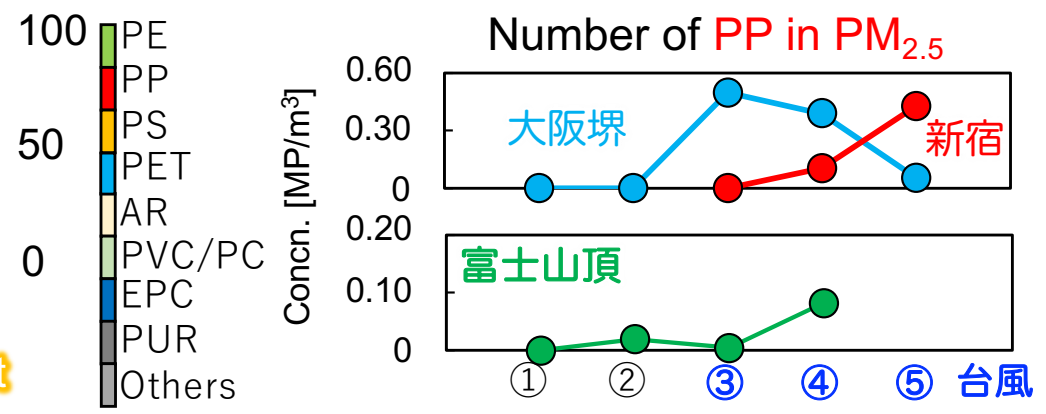
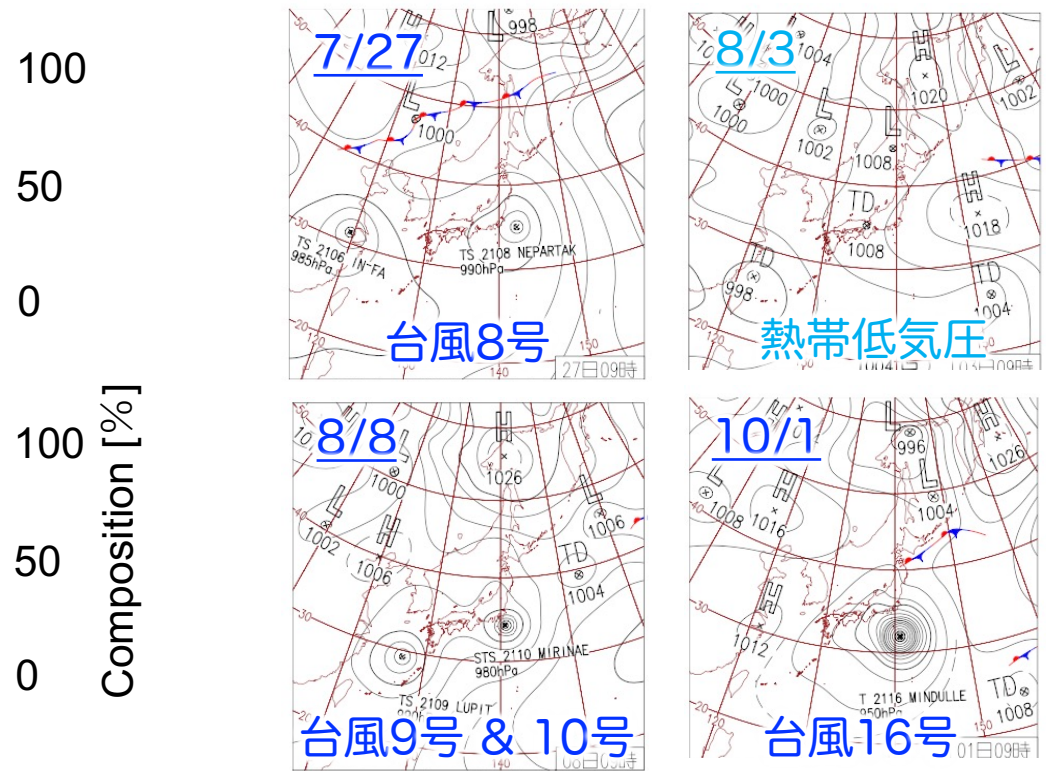
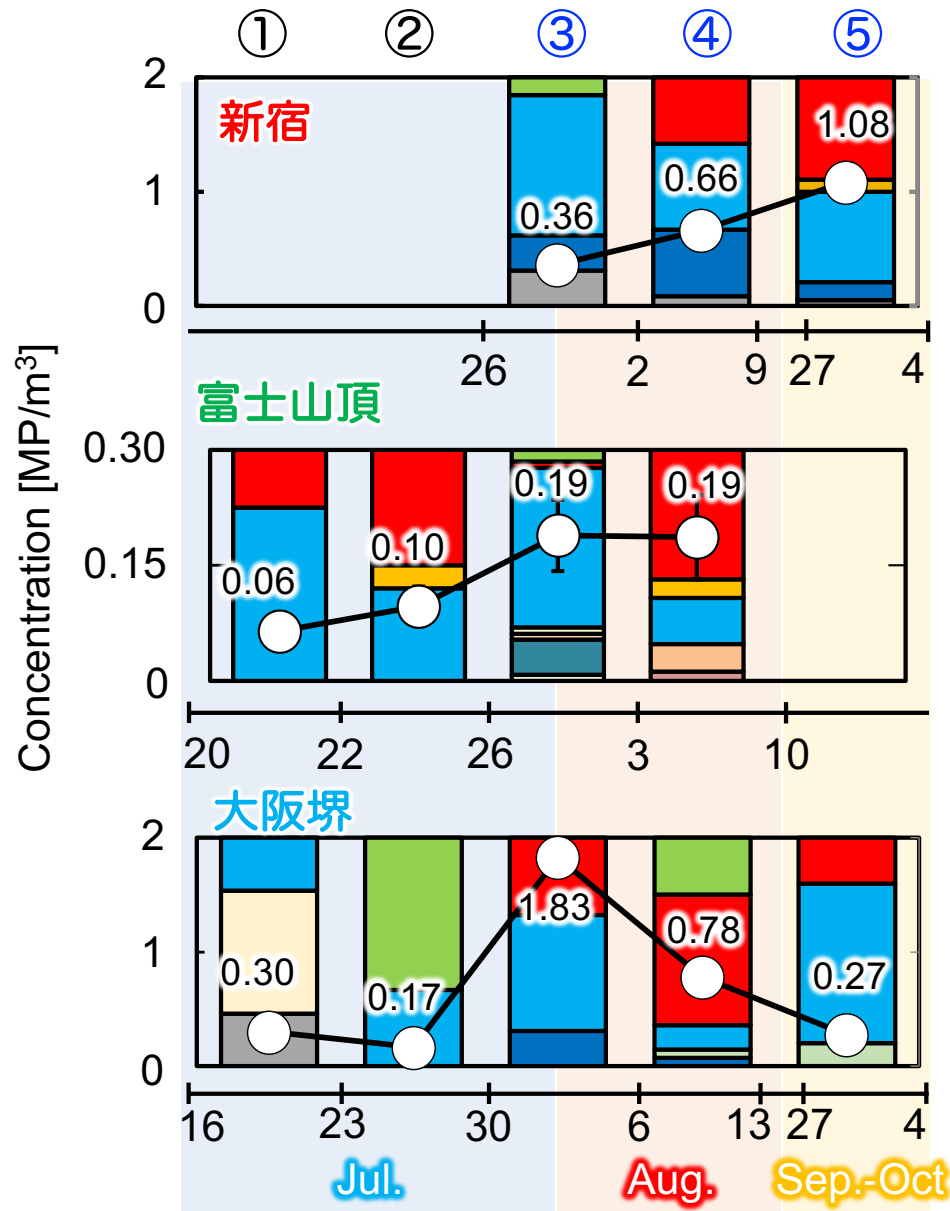
- 個数濃度
全濃度：夏 < 秋, 冬
PM_{2.5}：夏 > 秋, 冬
- ポリマー材質
✓ 夏：PP, PE, PET
✓ 秋：PP, PET
✓ 冬：PET



台風による海洋MPsの巻上げ？



夏季：台風による太平洋MPsの巻上げの影響

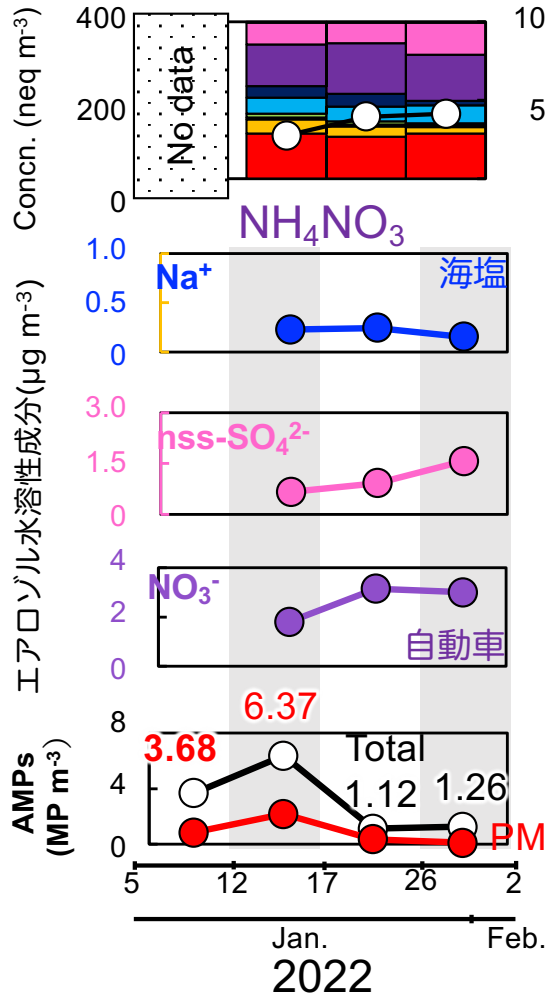


冬季に海洋MPsの巻上げ？

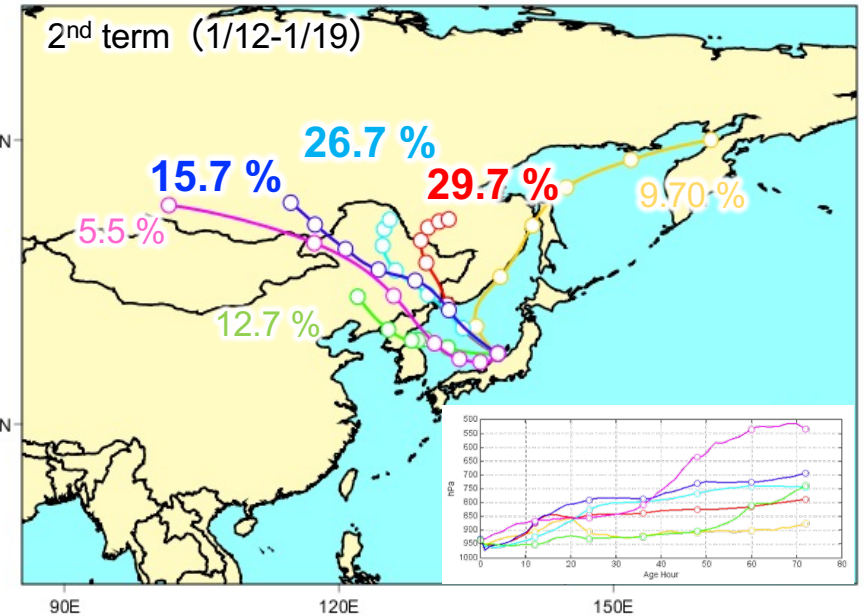
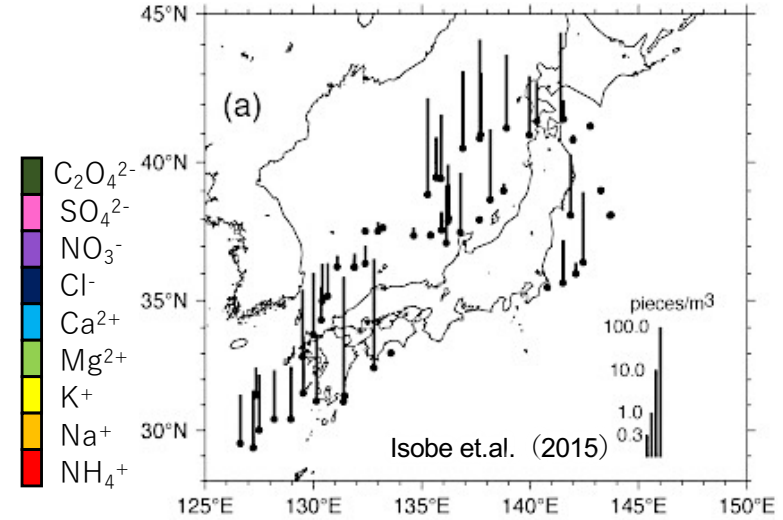
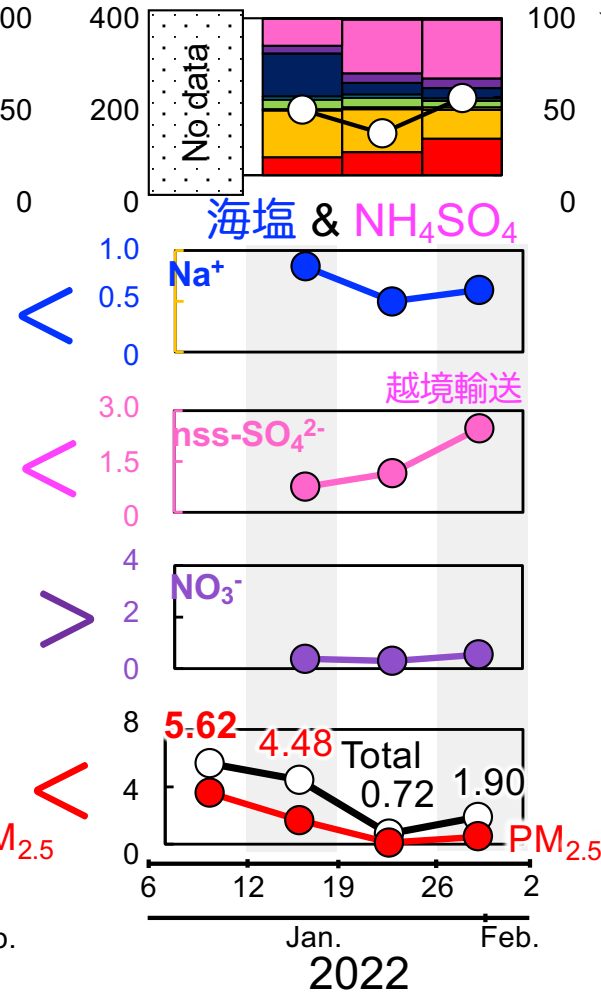


冬季：北西季節風による日本海MPsの巻上げの影響

新宿 (太平洋側都市部)



能登 (日本海側遠隔地)



国内大気：海洋MPsの影響大??



海洋-大気間のMPs移動量の解明が重要

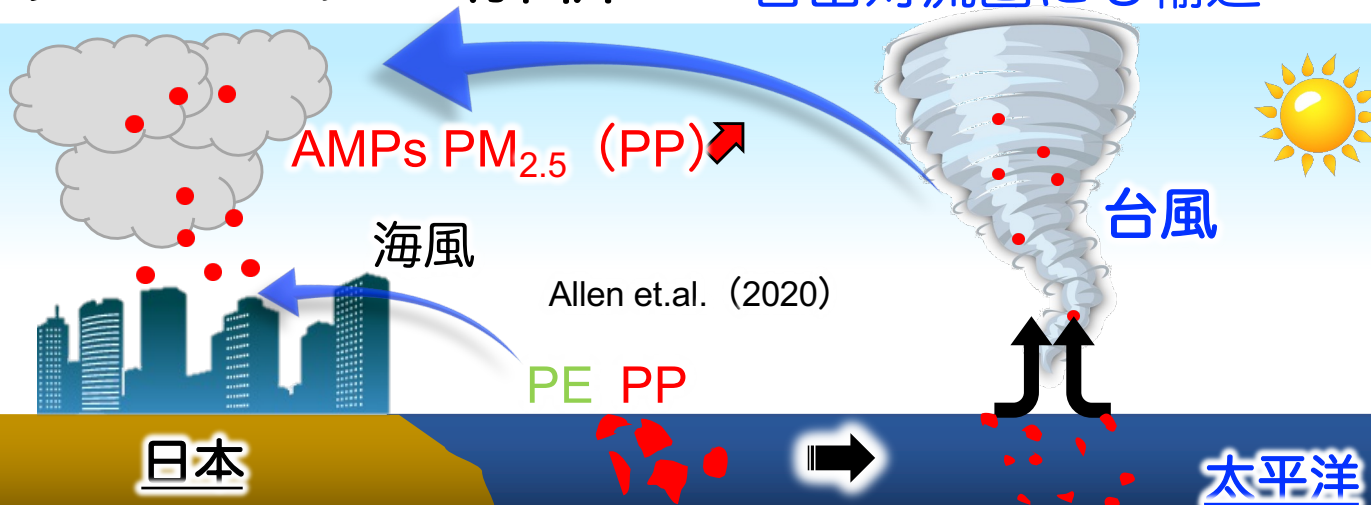
サブ2：モデル解析

自由対流圏にも輸送

夏

新宿

- 台風：AMPs PM_{2.5} ↑
- 材質：PP, PE, PET



冬

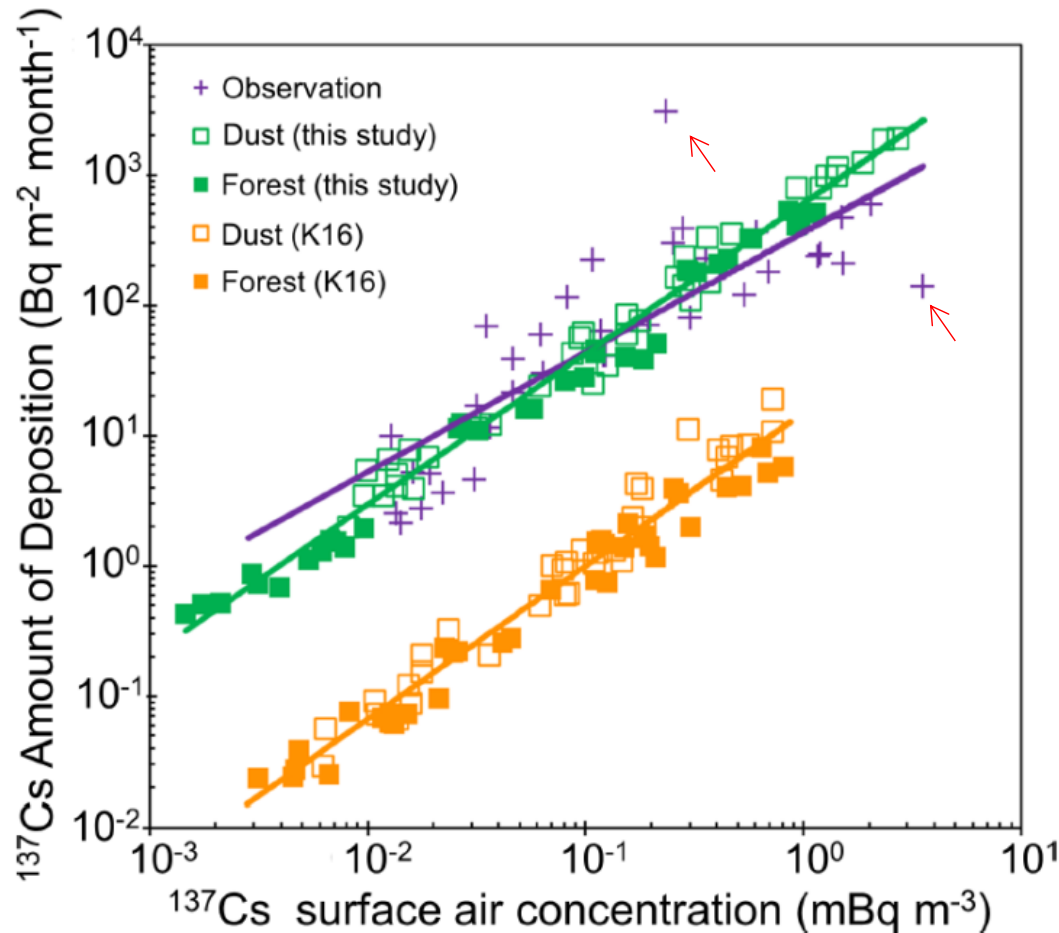
- 海塩 & AMPs ↑ 大陸からの越境輸送は小さい?
- 材質：新宿 & 能登 日本海由来のPET?



サブ2付録

CDV (Climatological Deposition Velocity) 解析

発生源が不明瞭な物質の領域収支を評価するための手法—福島原発事故起源の再浮遊¹³⁷Csで初めて提案。AMPsに応用可能。



サブミクロンを仮定した先行研究（オレンジ色）は、沈着量（沈着速度）を1桁以上過小評価していた。

- D: 沈着量、C: 濃度、a: 沈着速度、b: 非線形性（時空間非一様性）

$$D = aC^b, \quad \log(D) = b \log(C) + \log(a)$$

- bが1に近ければ、aが沈着速度（m/month）の次元になる（切片が主たる担体の粒径分布を表す）。観測（+）のb=0.97、外れ値（→）を除外するとb=0.98。
- 発生量を初期降下量に比例すると仮定して計算

$$F_{\text{dust}} = p_{20\mu\text{m}} F_M (1 - f_{\text{forest}}) B_{5\text{mm}}(t) C_{\text{const}},$$

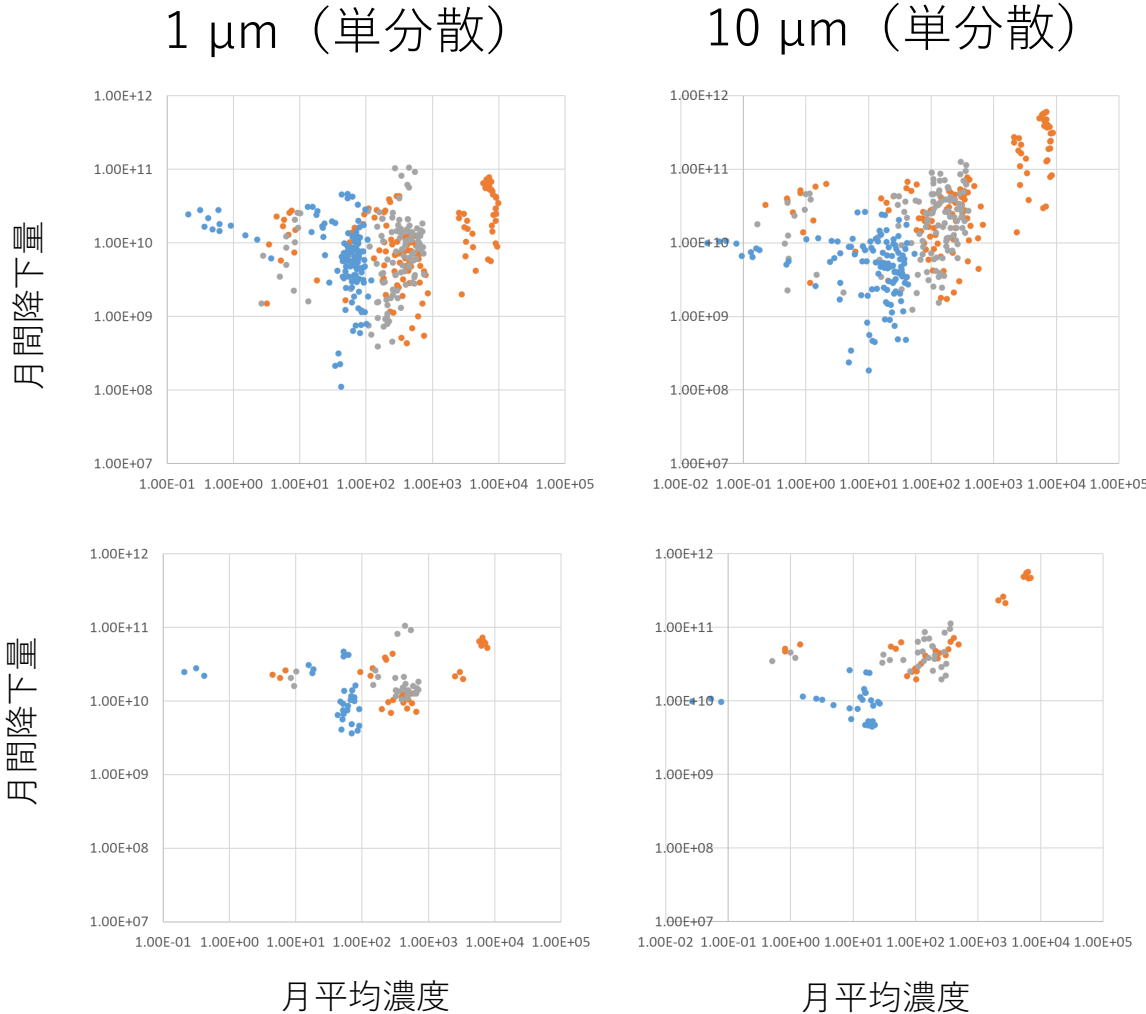
$$F_{\text{forest}} = f_{\text{forest}} f_{\text{green}} r_{\text{const}} B_{\text{obs}} R_{\text{decay}}(t),$$

切片は変わらない→輸送特性（粒径分布と吸湿性）と発生量を独立で抑え込むことができる。

AMPsのCDV解析例（モデル結果のみ）

全地点、通年
 (2015年7月～2016年6月)

春季のみ
 (2016年3-5月)



● 人口ベース

$$Fp = C_{p,const} \text{ (kg/person/s)} \times P \text{ (person/m}^2\text{)}$$

● 農地由来

$$Ff = C_{f,const} \text{ (kg/soil)} \times F_M \text{ (soil/m}^2\text{/s)} \propto U_*^3$$

● 海洋由来

$$Fo = C_{o,const} \text{ (kg/salt)} \times F_s \text{ (salt/m}^2\text{/s)} \propto U_{10}^{3.41}$$

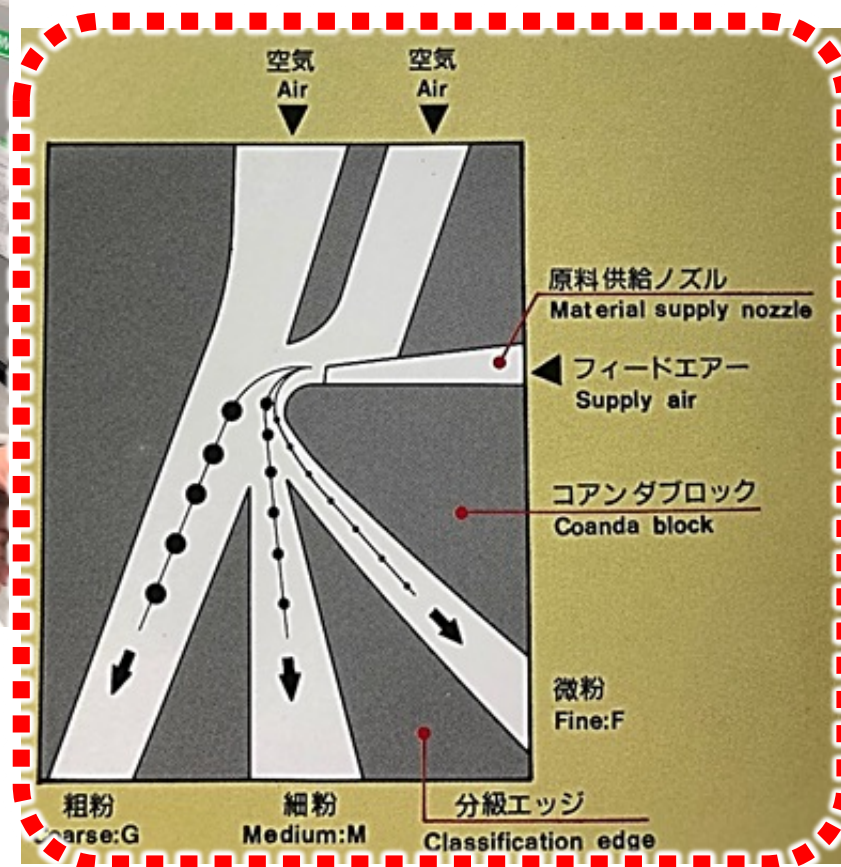
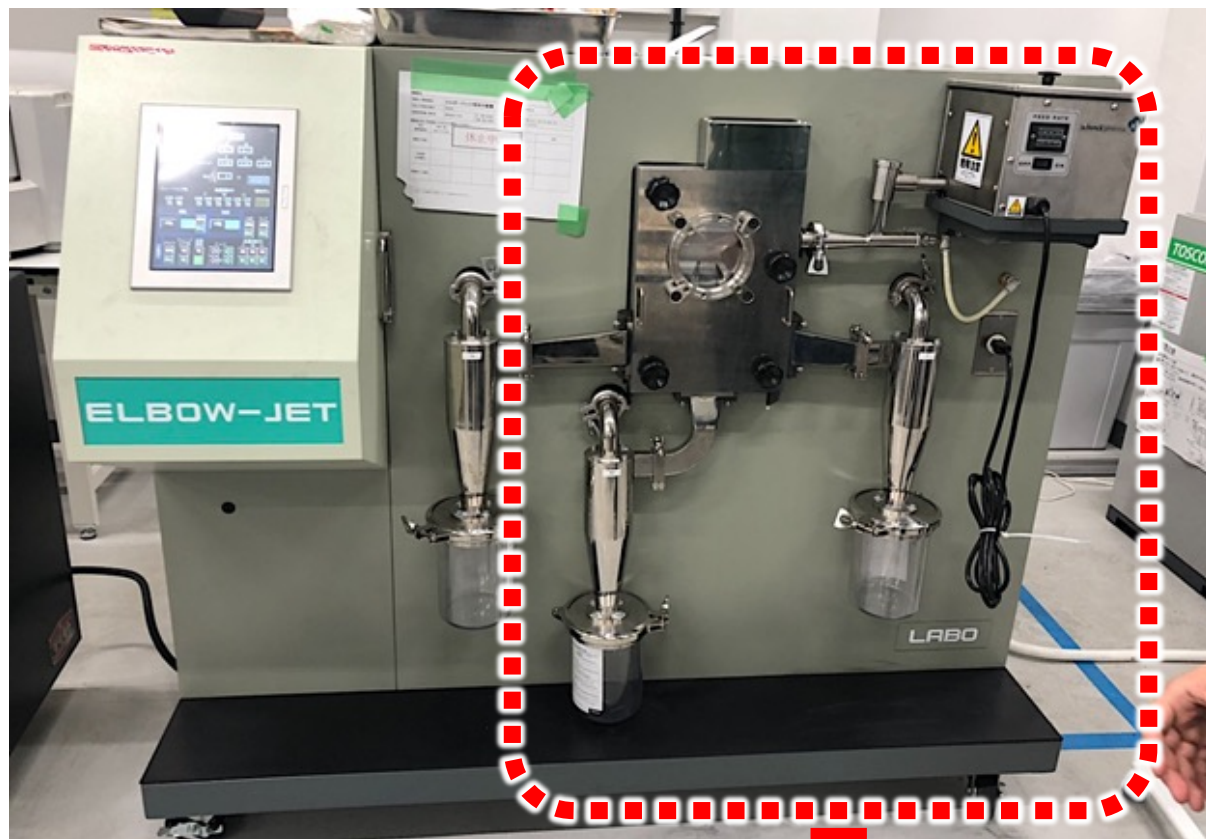
国内10の観測地点（早稲田、太郎坊、富士山頂、札幌、大阪、徳島、福島、浪江、西生田、松代）から（上）1年間、（下）3か月の月平均濃度と月間降水量のデータがそろったとしての想定。

→ 今後、サブテーマ1の観測結果と比較予定

- 数値に2~3桁の開きがありモデルの検証に有効。
- 0.1 μmと1 μmの違いは評価できないが、10 μm程度であればCDVにより分別が可能。
- 海洋由来は陸上由来物質に比べると予測値間の相関係数が低い。粒径が大きい場合は、人口由来とその他由来の沈着量間で負の相関。→ 濃度と沈着量の量と時間・空間相関の比較が有効。

サブ3付録

道路粉塵の乾式分級



エルボージェット分級機
(世界初の乾式微粉分級機)

繊維状 PET の作製



レギュラーポリエステル綿
ポリエステル 100%
Φ 14 μm
(ユニチカ株式会社より提供)



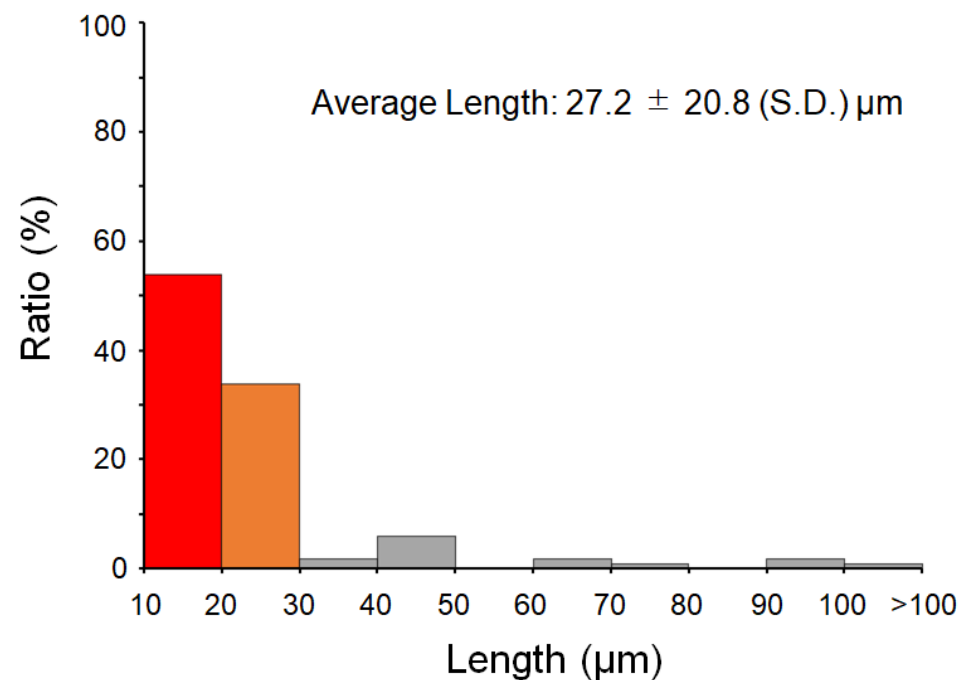
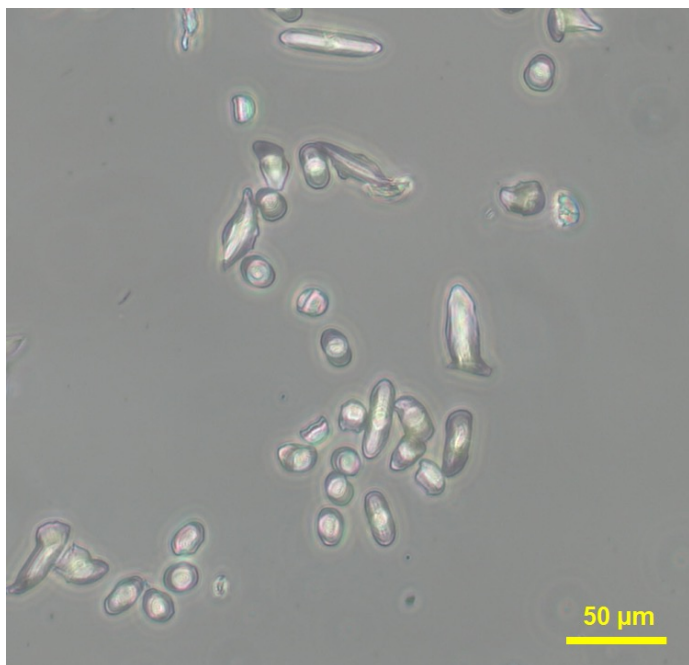
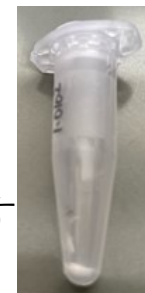
OCT Compound
を用いて包埋
凍結 (-20°C)



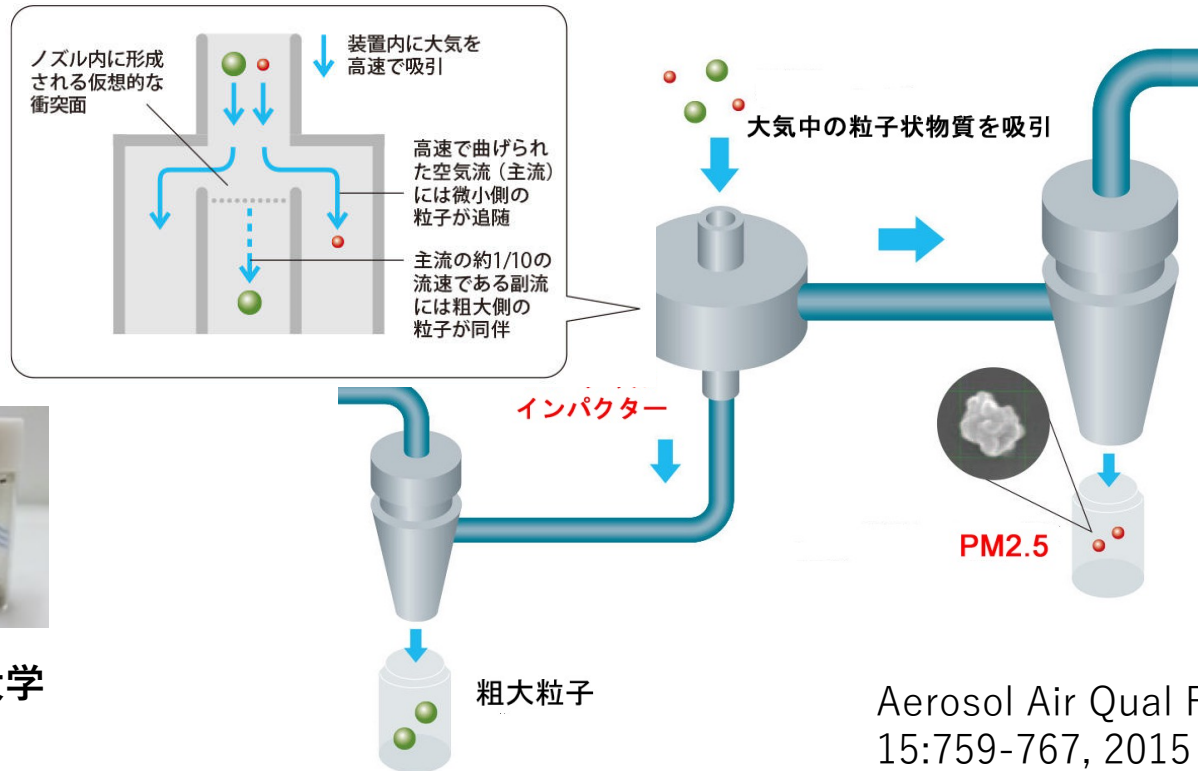
クリオスタットで
10 μm に切断



切片を蒸留水に懸濁
100 μm メッシュを通す
30,000 x g, 10 min
沈殿をデシケーターで乾燥



PM2.5 の捕集



サイクロン型 PM2.5 採取機@福岡大学

Aerosol Air Qual Res
15:759-767, 2015

Year	Place	Season	Sample Code	Period	Sampling Time [min]	Total Air Volume [m ³]	Particle Mass [mg]
2020	Yokohama	Spring	Y2020_4-5	2020/04/02~06/02	87,800	108,159	765
2018	Yokohama	Spring	Y2018_5-6	2018/05/15~06/05	30,225	39,771	308
2018	Yokohama	Winter	Y2018_1-2	2018/01/16~02/09	28,800	47,299	334
2018	Fukuoka	Spring	F2018_5-6	2018/05/11~06/07	37,296	50,436	259
1996-2005	Beijing	Combined	CRM28	(国立環境研究所より購入)			